www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

JAARGANG 23, 1961, no. 2 blz. 33-68 Verschenen 10 mei 1961

Philips Technisch Tijdschrift

BEHANDELEND TECHNISCHE VRAAGSTUKKEN
SAMENHANGENDE MET DE PRODUKTEN, WERKWIJZEN EN ONDERZOEKINGEN
VAN DE N.V. PHILIPS' GLOEILAMPENFABRIEKEN

NEUTRONENDIFFRACTIE

door J. A. GOEDKOOP *).

539.125.5:620.179.1

Nu jaarlijks een aantal nieuwe kernreactoren in werking wordt gesteld — onlangs b.v. een te Petten in ons land —, komt de neutronendiffractie als methode van structuuronderzoek steeds meer in de belangstelling te staan. Een voorname stimulans hierbij is dat men bepaalde interessante structuurdetails moeilijk of geheel niet met röntgendiffractie, maar wèl met neutronendiffractie aan het licht kan brengen. Dit geldt b.v. voor de ligging van waterstofatomen en de oriëntatie van magnetische momenten.

Sedert 1952 wordt voor neutronendiffractieonderzoekingen gebruik gemaakt van de kernreactor te Kjeller, Noorwegen, als onderdeel van het gemeenschappelijke onderzoekprogramma van het (Noorse) Institutt for Atomenergi en het Reactor Centrum Nederland. Verscheidene malen zijn daarbij structuurproblemen aangevat die hun oorsprong vonden in het Philipslaboratorium te Eindhoven, en die in nauwe samenwerking hiermee konden worden opgelost. In dit artikel wordt eerst de methodiek van de neutronendiffractie behandeld, en vervolgens wordt getoond hoe van een drietal verbindingen, die te Eindhoven met behulp van röntgendiffractie waren onderzocht [1]), door middel van neutronendiffractie belangrijke aanvullende structuurgegevens konden worden verkregen.

Inleiding

De structuur van een kristallijne stof kan men onderzoeken met behulp van het diffractiepatroon dat ontstaat wanneer röntgenstraling op het kristal valt. De verschillende methodes die men daarbij toepast, zijn onlangs vrij uitvoerig in dit tijdschrift besproken [1]).

Dat juist röntgenstraling voor dit doel geschikt is, hangt ermee samen dat de atoomafstanden in een kristal en de golflengte van deze straling van dezelfde orde van grootte zijn, nl. ruwweg 1 Å. Onder deze voorwaarde ontstaat er een diffractiepatroon met goed meetbare afbuigingshoeken. Men ziet dit gemakkelijk aan de bekende diffractievoorwaarde van Bragg:

$$2d \sin \Theta = \lambda, \quad \ldots\ldots\ldots \quad (1)$$

waarin d de roostervlakkenafstand, Θ de halve afbuigingshoek en λ de golflengte der straling voorstelt [2]).

Nu leert de golfmechanica dat een evenwijdige bundel van deeltjes met massa M en snelheid v zich in een aantal opzichten gedraagt als een vlakke golf met golflengte

$$\lambda = h/Mv, \quad \ldots\ldots\ldots \quad (2)$$

waarin h de constante van Planck is. Indien massa en snelheid van de deeltjes zodanig zijn dat de golflengte van de orde van 1 Å is, dan mag men bij doorgang van deze deeltjes door een kristal soortgelijke diffractieverschijnselen verwachten als bij doorgang van röntgenstraling. Zo is inderdaad, reeds kort nadat de relatie (2) door De Broglie was opgesteld,

*) Verbonden aan het Reactor Centrum Nederland, te Petten; tevens bijzonder hoogleraar in de studie van de materie met behulp van neutronen, Rijksuniversiteit te Leiden.

[1]) P. B. Braun en A. J. van Bommel, Bepaling van kristalstructuren met röntgenstralen, Philips techn. T. **22**, 135-146, 1960 (no. 4).

[2]) Het begrip roostervlak is hier ruimer genomen dan bij de oorspronkelijke formulering van de voorwaarde van Bragg. Wat oorspronkelijk een n^{de}-orde-reflexie van een schare roostervlakken met onderlinge afstand d' was, heet nu een (1ste-orde-) reflexie van een schare roostervlakken met onderlinge afstand $d = d'/n$. Uiteraard vervalt dan de factor n, die men gewend is in de diffractievoorwaarde van Bragg aan te treffen.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

de diffractie van elektronen in een kristal waargenomen. Van deze elektronendiffractie heeft men ook praktisch gebruik kunnen maken voor het structuuronderzoek van kristallen, al is de toepassing ervan voor het molecuulstructuuronderzoek van gassen nog belangrijker gebleken. De oorzaak hiervan is de zeer grote intensiteit van de elektronenverstrooiing, die maakt dat ook een kleine hoeveelheid gas nog een behoorlijk meetbaar diffractiepatroon geeft.

De ontwikkeling van de kernreactoren heeft in de laatste jaren nog een ander elementair deeltje in grote hoeveelheden voor het structuuronderzoek beschikbaar gemaakt, nl. het neutron, dat een ongeladen deeltje is met een massa van $1{,}6 \times 10^{-24}$ gram (d.i. ongeveer de massa van een proton). Men berekent gemakkelijk dat voor een golflengte van 1 Å neutronen nodig zijn met een snelheid van 4 km/s. De gelukkige omstandigheid doet zich nu voor dat in een kernreactor juist zeer veel neutronen met snelheden van enige km/s voorkomen. Men kan deze neutronen door een kanaal in de reactorafscherming naar buiten laten komen.

Aangezien de verstrooiing van neutronen in een aantal opzichten verschilt van die van röntgenstraling, kan de studie ervan het röntgenonderzoek aanvullen. Op grond hiervan heeft de neutronendiffractie als methode van structuuronderzoek zich de laatste jaren sterk ontwikkeld. In dit artikel wordt eerst de experimentele en theoretische grondslag van deze methode besproken [3]). Vervolgens wordt teruggegrepen naar de drie voorbeelden die in het aangehaalde artikel [1]) over structuuronderzoek met röntgenstralen zijn behandeld, en er wordt getoond hoe in elk van deze gevallen aanvullende gegevens konden worden verkregen door middel van neutronendiffractie.

De onderzoekingen zijn alle verricht met behulp van de kernreactor te Kjeller, Noorwegen, als onderdeel van het gemeenschappelijke onderzoekprogramma van het (Noorse) Institutt for Atomenergi en het Reactor Centrum Nederland.

De kernreactor als neutronenbron

In een kernreactor spelen de neutronen een wezenlijke rol, nl. die van dragers van de kettingreactie [4]). Bij de splijting van een uraniumkern die een neutron heeft gevangen, komen weer neutronen vrij, en de inrichting van een kernreactor is zodanig dat gemiddeld juist één daarvan weer in een uraniumkern wordt gevangen, waardoor ook deze tot splijting wordt gebracht. Nu neemt bij de te gebruiken uraniumkernen de kans op vangst toe naarmate de snelheid van het neutron kleiner wordt. In de meeste reactoren streeft men daarom ernaar de neutronen, die bij de splijting met een zeer grote snelheid vrijkomen, af te remmen door ze te doen botsen tegen de atoomkernen van een materiaal dat men daartoe speciaal toevoegt, de zg. moderator. Om een goede remming te geven, moeten deze kernen licht zijn; bovendien moeten ze niet de neiging hebben neutronen te vangen. Materialen die aan deze eisen voldoen en daarom in de praktijk als moderator worden gebruikt, zijn: gewoon water, zwaar water (d.i. water dat deuterium in plaats van waterstof bevat) en grafiet.

Zolang de neutronen een grote snelheid hebben, zullen ze bij elke botsing tegen een atoomkern in de moderator energie verliezen, en dus worden vertraagd. Echter, de kernen van de moderator staan ook niet stil: ze hebben een warmtebeweging. Wanneer nu de kinetische energie van een neutron door successieve botsingen is gedaald tot een waarde, vergelijkbaar met die van de energie welke de moderatoratomen door hun warmtebeweging hebben, dan wordt behalve vertraging ook versnelling mogelijk. Het resultaat is dat de neutronen in de moderator ten naaste bij in thermisch evenwicht komen, zich dus door de moderator gaan bewegen met een snelheidsverdeling die men voor een verdund gas van atoomgewicht 1 bij de heersende temperatuur zou verwachten. Een volkomen evenwicht wordt natuurlijk niet bereikt: immers, er komen „van boven" steeds nieuwe neutronen bij de verdeling, en bovendien heeft er een absorptie plaats waarvan bij afnemende snelheid de kans toeneemt.

De evenwichtsverdeling van de snelheden in een dergelijk gas kan worden afgeleid met behulp van de kinetische gastheorie. Het blijkt dat bij een temperatuur van 25 °C de meest voorkomende snelheid 2200 m/s is, hetgeen overeenkomt met een golflengte van 1,8 Å.

Experimentele techniek van de neutronendiffractie

In de afscherming om de reactor zijn nauwe rechte kanalen aangebracht: door deze kanalen kunnen de neutronen die toevallig met een geschikte richting binnentreden, ongehinderd naar buiten komen (*fig. 1*).

In het aangehaalde artikel [1]) is besproken dat voor structuuronderzoek door middel van diffractie in het algemeen gebruik wordt gemaakt van

---

[3]) Voor een uitvoeriger overzicht zij verwezen naar G. E. Bacon, Neutron diffraction, Clarendon Press, Oxford 1955; C. G. Shull en E. O. Wollan, Applications of neutron diffraction to solid state physics, deel 2, Academic Press, New York 1956; G. R. Ringo, Handbuch der Physik, deel 32, 552, Springer, Berlijn 1957.

[4]) Zie b.v. J. J. Went, Philips techn. T. **21**, 85, 1959.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

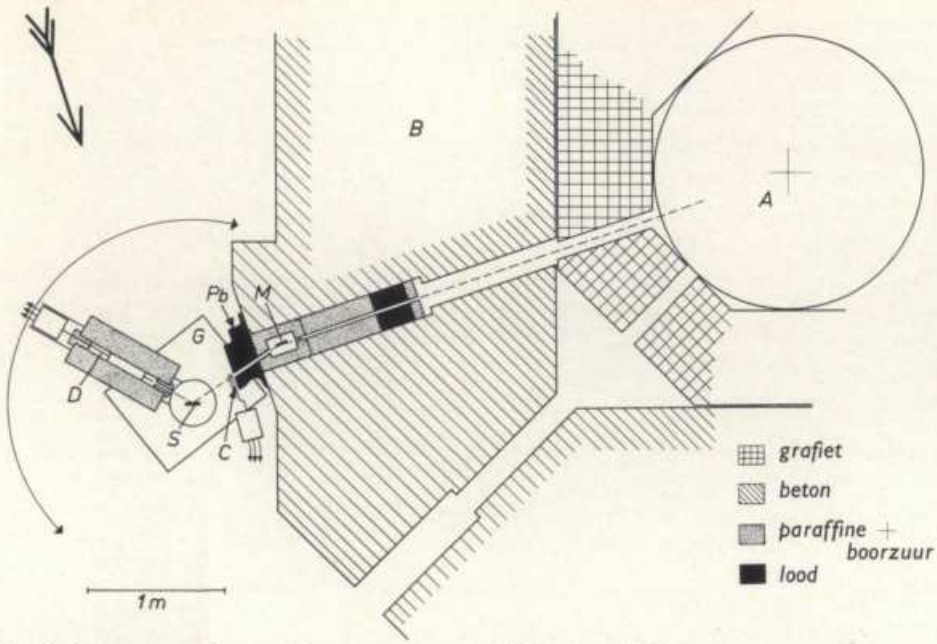

Fig. 1. Schema van de opstelling voor neutronendiffractie te Kjeller. De neutronen uit de reactor *A* die via een kanaal door de reactorafscherming *B* naar buiten komen, ontmoeten op hun weg een groot monokristal van lood *M*, waardoor ze — nog steeds binnen de afscherming — in alle richtingen verstrooid worden. Voor één richting hiervan is een opening in de loden afscherming *Pb* gemaakt: het geheel werkt hierdoor als een monochromator. Het kristal is bij deze opstelling te Kjeller zodanig geplaatst dat alleen *die* neutronen die worden gereflecteerd door de (111)-vlakken van het kristal, door de opening naar buiten treden, waardoor een monochromatische bundel van 1,03 Å golflengte verkregen wordt. Het te onderzoeken preparaat *S* (monokristal dan wel poeder) is gemonteerd op de as van de goniometer *G*; daaromheen kan de met BF_3 gevulde neutronenteller *D* zwenken. De teller is omgeven door een dikke afscherming om de in de reactorhal rondzwervende neutronen tegen te houden. Het apparaat werkt automatisch in stappen: bij stilstaande teller wordt het aantal verstrooide neutronen geteld gedurende een periode waarin een vast aantal neutronen (b.v. 100 000) worden geregistreerd in een kleine monitorteller *C* die een deel van de niet-verstrooide monochromatische bundel onderschept. Aan het eind van de periode wordt het getelde aantal op een papierstrook afgedrukt en de tellerarm over een hoek van 0,2° gedraaid, waarbij de preparaattafel met de halve hoeksnelheid meedraait. Daarna begint een nieuwe telperiode. In fig. 2 kijken we naar deze opstelling langs de richting van de pijl links boven.

monochromatische straling. De neutronen evenwel die uit de reactor komen, hebben een brede snelheids-, en dus ook golflengteverdeling. Daarom is de eerste eis, neutronen van de gewenste golflengte uit zo'n bundel te selecteren. Ook dit geschiedt op een wijze die men van de röntgenstralen kent, nl. weer door diffractie: men plaatst in de bundel een monokristal (meestal een metaalkristal), dat de neutronen in allerlei richtingen verstrooit. Elke richting correspondeert hierbij met een andere golflengte, die bepaald is door het gekozen kristal en de stand ervan, volgens de voorwaarde van Bragg, verg. (1). Met een dergelijk kristal kan men dus teweegbrengen dat een monochromatische bundel van een speciale, gewenste golflengte door een opening in de afscherming naar buiten treedt (fig. 1). Deze neutronenbundel (die uiteraard veel zwakker is dan de oorspronkelijke) kan dan verder in principe op dezelfde wijze gebruikt worden als monochromatische röntgenstraling. Men kan dus zowel een monokristal als een poedervormig preparaat in de bundel plaatsen en nagaan met welke intensiteit de neutronen in verschillende richtingen verstrooid worden.

Overigens hebben neutronen niet het vermogen een fotografische film te zwarten. Hoewel er kunstgrepen bestaan om toch fotografische neutronenverstrooiingspatronen op te nemen, maakt men in de praktijk voor het aantonen van neutronen in het algemeen gebruik van een telbuis, zoals trouwens bij de röntgendiffractie ook meer en meer gebruikelijk geworden is [5]). Weliswaar werken neutronen, door het ontbreken van lading, niet ioniserend; ze kunnen dus ook een telbuis niet rechtstreeks doen aanspreken. Men ondervangt deze moeilijkheid door een telbuis te gebruiken die gevuld is met boriumtrifluoridegas. De boriumkern heeft de eigenschap, gemakkelijk een neutron te vangen en dan in twee geladen brokstukken uiteen te vallen. Deze werken ioniserend, veroorzaken dus een ontlading in de telbuis, en op deze wijze kan men het aantal neutronen dat de telbuis binnentreedt, tellen.

Om de intensiteitsverdeling in verschillende richtingen te bepalen, wordt de neutronentelbuis op de beweegbare arm van een goniometer geplaatst, zodat hij een boog om het te onderzoeken preparaat kan beschrijven, geheel analoog met een röntgendiffractometer [6]). Voor details van de opstelling zij verwezen naar fig. 1, waarin de voornaamste diffractieopstelling te Kjeller geschetst is [7]). *Fig. 2* geeft een overzicht van deze apparatuur.

---

[5]) Zie b.v. W. Parrish, Meting van röntgenintensiteiten met telbuizen, Philips techn. T. **17**, 300-316, 1955.

[6]) Zie b.v. W. Parrish, E. A. Hamacher en K. Lowitzsch, Philips techn. T. **16**, 253, 1954.

[7]) Voor een wat uitvoeriger beschrijving, zie J. A. Goedkoop, Ned. T. Natuurk. **23**, 140, 1957.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Fig. 2. De opstelling voor neutronendiffractie te Kjeller. De kijkrichting is de pijl in fig. 1. In het midden van het loden blok onder het nummer 13 bevindt zich de met een plaat afgedekte uittree-opening der neutronen. Hierachter is de monitorteller te zien. Het preparaat is zichtbaar voor de mouw van de experimentator. De grote cilinder in het midden van de foto is de afscherming rond de neutronenteller, die gemonteerd is op een goniometerarm, die om dezelfde as draait als het preparaat. Geheel rechts op de arm: de voorversterker van de neutronenteller. Onder de preparaattafel zijn enkele tandwielen van het aandrijfmechanisme zichtbaar. Het regel- en registratiesysteem is ondergebracht in de twee rekken op de achtergrond. Midden op het rechtse rek worden de resultaten op een papierstrook gedrukt. (Overgenomen uit: Atoomenergie en haar toepassingen **2**, 82, 1960.)

Neutronenverstrooiing door de atoomkern

Elektromagnetische straling wordt door geladen deeltjes verstrooid met een amplitude die omgekeerd evenredig is met de massa van het deeltje. Vandaar dat röntgenverstrooiing ons alleen iets leert over de verdeling van de elektronen in een kristal: de atoomkernen zijn te zwaar om een merkbare bijdrage te geven.

Bij de neutronenverstrooiing ligt de zaak anders: het zijn daar juist de kernen die verstrooien, terwijl de wisselwerking tussen neutron en elektron zeer gering is (behoudens een belangrijke uitzondering, waarop we nog terugkomen).

Zoals bekend, is het neutron een normaal bestanddeel van alle atoomkernen (behalve ^{1}H). De krachten tussen een neutron en een atoomkern in botsing zijn van dezelfde aard als die welke in de kern de neutronen en protonen bijeenhouden. Karakteristiek voor deze krachten is hun korte dracht, ongeveer 10^{-12} cm, hetgeen dan ook globaal de grootte van de atoomkern is. Daar de golflengte waarmee we werken, van de orde van 10^{-8} cm is, kan men de atoomkern beschouwen als een puntvormige verstrooier, hetgeen met zich meebrengt dat de verstrooiing isotroop is. Daardoor kan men voor een bepaalde atoomkern de verstrooiende werking met één enkel getal beschrijven. Men noemt deze grootheid de verstrooiingslengte; zij wordt aangeduid door de letter b.

Om de definitie van b duidelijk te maken, beschouwen we een evenwijdige bundel neutronen, alle met snelheid v cm/s en met een dichtheid van n neutronen per cm^3. De neutronenflux is dan nv, d.w.z. door een oppervlak van 1 cm^2, geplaatst loodrecht op de bundel, passeren nv neutronen per seconde.

In de golfmechanische beschrijving wordt de bundel voorgesteld door een vlakke golf met amplitude $\sqrt{n}$ (het kwadraat van de absolute waarde van de golffunctie moet overal gelijk zijn aan de plaatselijke dichtheid). Plaatsen we nu één enkele atoomkern in de bundel, dan zal deze blijkens het bovenstaande het centrum worden van een bolvormige verstrooide golf. De amplitude hiervan is evenredig met $\sqrt{n}$ en omgekeerd evenredig met de afstand r; de amplitude kunnen we dus $(b/r)\sqrt{n}$

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

stellen, waarmee de grootheid b gedefinieerd is. We merken nog op dat zij kennelijk de dimensie van een lengte heeft.

Hierop aansluitend voeren we nog een ander begrip in. Volgens het bovenstaande wordt de dichtheid van de verstrooide neutronen op een afstand r gelijk aan $(b/r)^2 n$. Denken we om de verstrooiende kern een bol met straal r, dan ontwijken door die bol per seconde

$$4\pi r^2 \times v \times (b/r)^2 n = 4\pi b^2 nv \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (3)$$

verstrooide neutronen. De verstrooiende kern zal dus van de nv neutronen die een oppervlak van 1 cm^2 treffen, als het ware *die* verstrooien die op een gedeelte $\sigma = 4\pi b^2$ van dat oppervlak vallen, en de overige geheel niet. Men noemt daarom σ de *werkzame doorsnede voor verstrooiing*. Deze grootheid heeft globaal de grootte van de doorsnede van de atoomkern.

Voor een aantal elementen, nl. die welke voorkomen in de in dit artikel te behandelen voorbeelden, hebben we in de derde kolom van *tabel I* de verstrooiingslengten opgenomen [8]). Het zou buiten het kader van dit artikel voeren, in te gaan op de kernfysische factoren die bepalend zijn voor de verstrooiingslengte. Een kwantitatieve behandeling daarvan is trouwens in het algemeen nog niet mogelijk, en in de meeste gevallen zijn de verstrooiingslengten empirisch vastgesteld. Ook hierop zullen we niet ingaan, en dus in het volgende de verstrooiingslengten eenvoudig als gegeven grootheden beschouwen.

De getabelleerde waarden geven aanleiding tot enige opmerkingen die voor het verdere betoog van belang zijn.

a) De verschillende isotopen van een element hebben verschillende verstrooiingslengten, zoals wel zeer duidelijk wordt gedemonstreerd door het frappante onderscheid tussen H en D. Van de overige elementen is steeds een gemiddelde waarde opgenomen, geldend voor de natuurlijke isotopenverhouding.

Tabel I. Verstrooiingslengten van enkele atomen voor neutronen en voor röntgenstraling.

Element	Atoomnummer Z	Neutronenverstrooiingslengte *) b in 10^{-12} cm	Röntgenverstrooiingslengte c in 10^{-12} cm	
			voor $\sin\Theta/\lambda = 0$	voor $\sin\Theta/\lambda = 0{,}5 \times 10^8$ cm^{-1}
waterstof	1	H: — 0,38 D: 0,65	0,28	0,02
zuurstof	6	0,58	2,25	0,62
aluminium	13	0,35	3,65	1,55
mangaan	25	—0,37	7,0	3,1
ijzer	26	0,96	7,3	3,3
zink	30	0,59	8,5	3,9
barium	56	0,53	15,8	8,3
thorium	90	1,01	25,2	14,4

*) Behalve bij waterstof zijn dit de verstrooiingslengten voor het natuurlijke isotopenmengsel.

[8]) Ontleend aan Bacon, l.c. [3]).

b) In twee gevallen, H en Mn, (en bij nog enkele hier niet genoemde elementen) is de verstrooiingslengte negatief. Om de betekenis hiervan in te zien, bedenke men dat de verstrooide neutronengolf nog verschillende fazen kan hebben ten opzichte van de invallende golf. In de praktijk komen hoofdzakelijk twee gevallen voor: de verstrooide golf is, ter plaatse van de verstrooiende kern, in faze met de invallende golf, dan wel in tegenfaze ermee. Deze twee gevallen kan men tot uitdrukking brengen in het teken van b: in veruit de meeste gevallen is er een fazeverschil van 180°, hetgeen men, volgens afspraak, aangeeft door het plusteken, terwijl als uitzondering ook een fazeverschil van 0°, en dus een negatieve b, voorkomt.

c) Hoewel er in tabel I wel een tendentie is waar te nemen dat de verstrooiingslengte groter wordt met toenemende Z (deze tendentie wordt duidelijker als men een tabel voor alle elementen bekijkt), is deze toeneming weinig geprononceerd in vergelijking met de zeer sterke, onregelmatige variaties (vgl. b.v. de buren Mn en Fe).

Vergelijking met röntgenverstrooiing

We merkten reeds op dat röntgenstralen worden verstrooid door de elektronen in een kristal. In overeenstemming hiermee neemt de verstrooiende werking van een atoom voor röntgenstraling ongeveer lineair toe met toenemend aantal elektronen, en dus met toenemend rangnummer Z in het periodiek systeem. Het is nu duidelijk dat, als we b.v. een verbinding beschouwen die naast thorium ($Z = 90$) waterstof bevat ($Z = 1$), de bijdrage van de waterstof tot de verstrooiing in het niet zal vallen vergeleken met die van het thorium. Het zal dus moeilijk, zo niet onmogelijk zijn met behulp van röntgendiffractie te bepalen waar zich de waterstof precies bevindt.

Een blik op tabel I toont dat in het geval van neutronendiffractie de situatie voor de waterstof aanzienlijk gunstiger is.

Het kan anderzijds ook voorkomen dat een kristal twee elementen bevat die in het periodiek systeem dicht bijeen staan. Dan zal de elektronendichtheid niet veel veranderen als men de twee atomen van plaats laat verwisselen, zodat uit het röntgendiffractiebeeld moeilijk kan worden afgeleid waar zich het ene en waar zich het andere bevindt. Ook in zo'n geval kan de neutronendiffractie veel gunstiger blijken te zijn. Een sprekend voorbeeld is het geval van Fe en Mn, dat terloops reeds is genoemd; een ander voorbeeld zal in hetgeen volgt worden behandeld. Daarbij zal dan nog een derde zeer be-

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

langrijk verschil tussen röntgen- en neutronendiffractie naar voren komen, nl. dat de laatste ons iets kan leren over de magnetische structuur van kristallen.

Voordat we op dit interessante aspect ingaan en de verschillende voorbeelden nader bespreken, vervolgen we nog even de vergelijking van neutronen- met röntgenverstrooiing. De elektronen zijn puntvormige verstrooiers voor röntgenstraling, doch het diffractiepatroon dat we met röntgenstraling waarnemen, is noodzakelijkerwijze een gemiddelde over een tijd waarin de elektronen vele evoluties in de ruimte hebben gemaakt. Vandaar dat het beeld dat we van de elektronen krijgen, een „uitgesmeerde" continue verdeling van elektronen in de ruimte is. Iets dergelijks, zij het in veel geringere mate, geldt voor de kernen als verstrooiers van neutronen. De kernen bevinden zich in eerste benadering op vaste plaatsen in het kristal; de verstrooiende werking voor neutronen is dus overal nul, behalve op de plaatsen van de kernen (waar ze, geïntegreerd over een gebiedje met diameter van ongeveer 10^{-12} cm, een waarde heeft evenredig aan de verstrooiingslengte). De warmtebeweging van de kernen echter zorgt ook hierbij voor een spreiding der massaverdeling, al is in de regel de uitgesmeerdheid die deze aan de kernen geeft, klein, vergeleken met de uitgebreidheid van de elektronenwolken.

Deze overeenkomst in de massaverdeling, die in kristallen uiteraard een periodiek verloop vertoont, maakt dat we bij neutronendiffractie, evenals voor röntgendiffractie vroeger is aangetoond, de dichtheid ontbonden kunnen denken in fouriercomponenten. In [1]) is uiteengezet dat we nu juist deze fouriercomponenten uit het diffractiepatroon kunnen afleiden. De structuur bepalen we vervolgens op een wijze die in principe zeer eenvoudig is, nl. door de verkregen componenten op te tellen (fouriersynthese). In *fig. 3a, b* geven we een voorbeeld van de toepassing van deze fouriermethode resp. met röntgenstraling en met neutronen.

Al blijkt hieruit dat in principe neutronendiffrac-

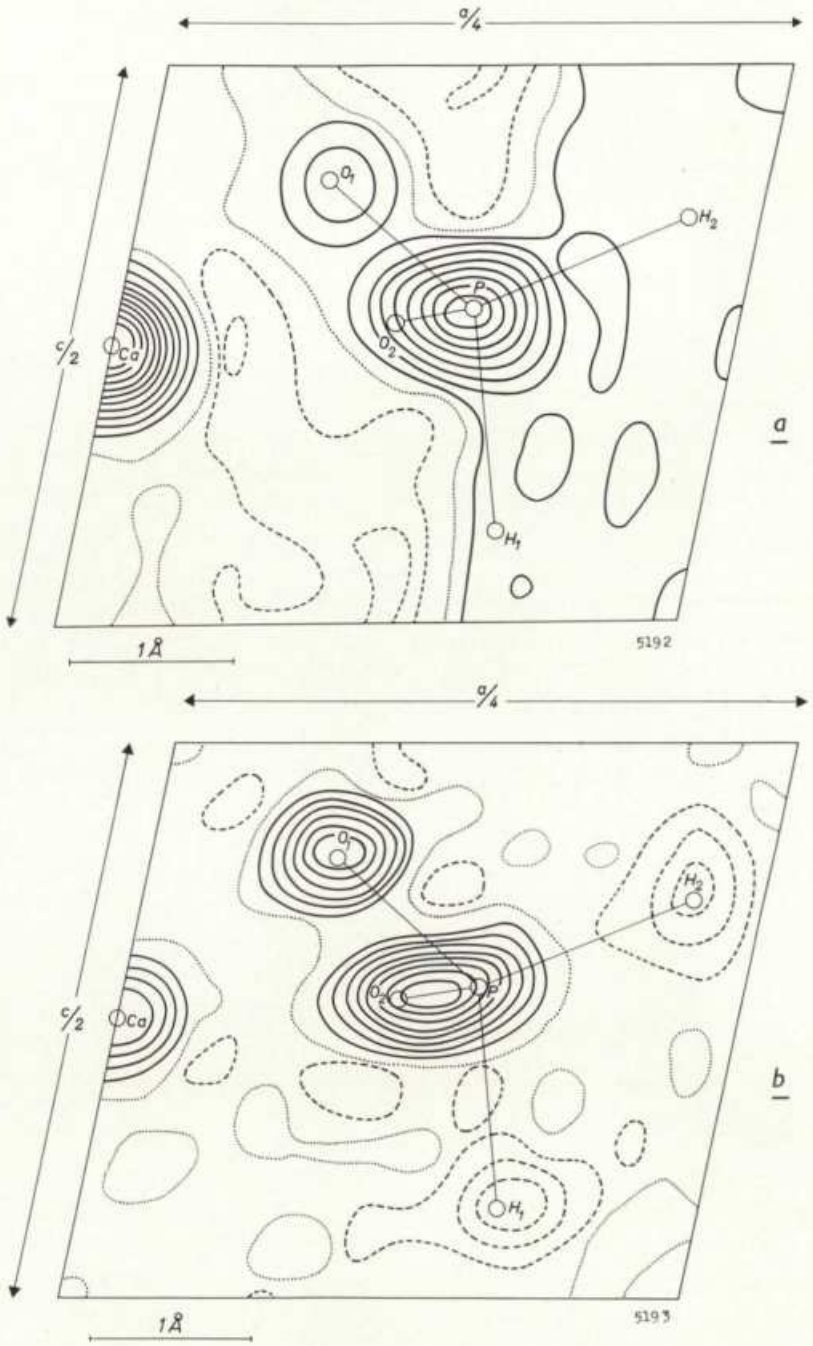

Fig. 3. De kristalstructuur van de verbinding $Ca(H_2PO_2)_2$. *a*) bepaald door röntgendiffractie, *b*) bepaald door neutronendiffractie. Er is in beide gevallen gebruik gemaakt van de in het aangehaalde artikel [1]) beschreven fouriermethode. In *a* geven de contourlijnen de verdeling der elektronen, en in *b* die der kernen aan (de getrokken lijnen verbinden plaatsen van gelijke positieve dichtheid, de stippellijnen plaatsen van dichtheid nul, en de streepjeslijnen plaatsen van gelijke negatieve dichtheid). Opvallend is dat de waterstofatomen, waarvan men in *a* niets bespeurt, in *b* zo duidelijk zichtbaar zijn, hetgeen één der voordelen van neutronendiffractie demonstreert.

Het negatieve teken van de dichtheid op bepaalde plaatsen in *a* en in de „vlakke" gedeelten van *b* heeft geen fysische betekenis: het is te wijten aan de gevolgde berekening, waarbij gemakshalve een op alle plaatsen constante positieve term is weggelaten. Bij de waterstofatomen in *b* echter heeft het teken wel een fysische oorzaak, nl. een faze-effect bij de verstrooiing; hiervoor zij naar de tekst verwezen.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

tie en röntgendiffractie op gelijke wijze behandeld kunnen worden, toch heeft het genoemde kwantitatieve verschil tot gevolg dat de vergelijking op sommige punten niet meer opgaat. Ten eerste brengt de uitgebreidheid van de elektronenwolk mede dat er in het geval van röntgenverstrooiing merkbare weglengteverschillen tussen verstrooide stralen optreden. De hiermee verbonden fazeverschillen maken dat de uit verstrooiing door één wolk resulterende röntgenintensiteit afneemt met toenemende afbuigingshoek en dat dientengevolge in het diffractiediagram een tendentie tot „uitsterven" van de reflexies met toenemende hoek aanwezig is. Gezien het veel meer geconcentreerde beeld dat de verdeling der kernmassa geeft, ontbreekt een dergelijke afneming bij neutronendiffractie. Ten tweede heeft de meer geconcentreerde verdeling der kernmassa de consequentie dat de fouriermethode niet meer de meest voor de hand liggende is, maar dat men hier meestal de methode van „trial and error" gebruikt.

De toepasbaarheid van deze, veel eenvoudiger, methode berust erop dat men bij een neutronendiffractieonderzoek veelal alleen een aanvulling moet geven — waarbij men uitgaat van een, reeds vrij gedetailleerd, beeld van de structuur dat door een onderzoek met röntgenstraling geleverd is. Men zal b.v. alleen nog maar de ligging van waterstofatomen moeten bepalen, en daarbij nog de keus kunnen maken uit een aantal mogelijke posities, of men zal moeten vaststellen of aanwezige magnetische momenten de ene dan wel de tegengestelde richting hebben, enz. Zulke vragen kan men heel geschikt met de methode van „trial and error" beantwoorden. Men beproeft hierbij verschillende kristalmodellen, door de op grond hiervan berekende intensiteiten der reflexies te vergelijken met de waargenomen intensiteiten. Deze methode kan in eenvoudige gevallen ook bij röntgendiffractie worden toegepast. De zojuist genoemde berekening van de (relatieve) intensiteiten der reflexies (dat zijn de kwadraten van de verstrooiingsamplitudes F) uit een aangenomen kristalmodel vormt geen probleem, en is bij neutronendiffractie zelfs nog wat gemakkelijker dan bij röntgendiffractie. De verstrooiingsamplitudes F worden eenvoudig verkregen door optellen van de verstrooiingslengten van de aan de verstrooiing bijdragende atomen, met inachtneming van de fazeverschillen die het gevolg zijn van de optredende weglengteverschillen.

Het feit dat bij neutronendiffractie weinig met de fouriermethode gewerkt wordt, is er ook de reden van dat wij in dit artikel verder geen gebruik maken van de voorstelling der bovengenoemde fouriercomponenten (dichtheidsgolven), welke aan het aangehaalde artikel [1]) ten grondslag was gelegd. Deze voorstelling, waarbij elke reflexie ontstaan kan worden gedacht door spiegeling tegen de golffronten van een dichtheidsgolf, leent zich bijzonder voor het begrijpelijk maken van de fouriermethode, terwijl voor de methode van „trial and error" wij ons eenvoudiger kunnen baseren op de alternatieve voorstelling van individueel verstrooiende atomen, waarbij men elke reflexie ontstaan kan denken door spiegeling tegen roostervlakken.

We duiden nog nader aan hoe het zojuist genoemde in rekening brengen van de fazeverschillen voor het berekenen van de diffractie-intensiteiten in formule kan worden gebracht.

Stel dat atoomkernen gemerkt j met verstrooiingslengte $\mathbf{b}_j$ geplaatst zijn op posities $\mathbf{r}_j$. Indien nu $\mathbf{S}_0$ en $\mathbf{S}$ eenheidsvectoren zijn in de richting van resp. de invals- en verstrooiingsrichting, dan vindt men door optellen van de in faze verschillende bijdragen van de verschillende atomen dat de amplitude van de verstrooide golf evenredig moet zijn met

$$F = \sum_j \mathbf{b}_j \exp\{-2\pi\, \mathrm{i}\mathbf{r}_j \cdot (\mathbf{S}-\mathbf{S}_0)/\lambda\}. \quad . \; . \; . \quad (5)$$

Ook voor de verstrooiing van röntgenstraling kan men een dergelijke formule opschrijven:

$$F = \sum_j \mathbf{e}_j \exp\{-2\pi\, \mathrm{i}\mathbf{r}_j \cdot (\mathbf{S}-\mathbf{S}_0)/\lambda\}. \quad . \; . \; . \quad (6)$$

De verstrooiingslengten $\mathbf{e}_j$ die hierin voorkomen, hangen echter — anders dan de neutronenverstrooiingslengten — af van afbuigingshoek en golflengte, en wel neemt de verstrooiingslengte met toenemende waarde van $\sin\Theta/\lambda$ af. Dit compliceert natuurlijk enigszins de berekening, daar men nu voor elke waarde van $\sin\Theta/\lambda$ de corresponderende waarde van de verstrooiingslengte van elk atoom moet weten. De oorzaak van het verschijnsel hebben we reeds vermeld: het is de uitgebreidheid van de elektronenwolk, vergeleken met de golflengte van de straling. Om een indruk te geven van de grootte der besproken afneming zijn in de kolommen 4 en 5 van tabel I de röntgenverstrooiingslengten van de verschillende daar genoemde elementen opgenomen, resp. voor $\sin\Theta/\lambda = 0$, en voor $\sin\Theta/\lambda = 0{,}5\times10^8\ \mathrm{cm}^{-1}$.

We behandelen nu het drietal aangekondigde voorbeelden van onderzoek met neutronen, waarbij de aanvullende structuurgegevens met de zo juist besproken methode van „trial and error" konden worden verkregen.

Eerste voorbeeld: bepaling van de plaatsen van waterstofatomen, opgenomen in de legering Th_2Al

De legering Th_2Al heeft het vermogen gassen op te nemen. Zo kan waterstof geabsorbeerd worden, tot de samenstelling Th_2AlH_4 is bereikt. Daarbij veranderen de afmetingen van de tetragonale elementaire cel, doch de relatieve ligging van de Al- en Th-atomen blijft onveranderd. Men ziet dit duidelijk uit de röntgendiffractie. In debye-scherrerdiagrammen van de verbindingen met samenstellingen Th_2Al, Th_2AlH_2, Th_2AlH_3 en Th_2AlH_4, die in *fig. 4* zijn weergegeven, constateert men wel verschuiving van de diffractiemaxima, doch hun intensiteiten blijven vrijwel dezelfde.

Uit dit laatste feit blijkt nog eens dat het onmogelijk is uit de röntgenverstrooiing iets te weten te

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

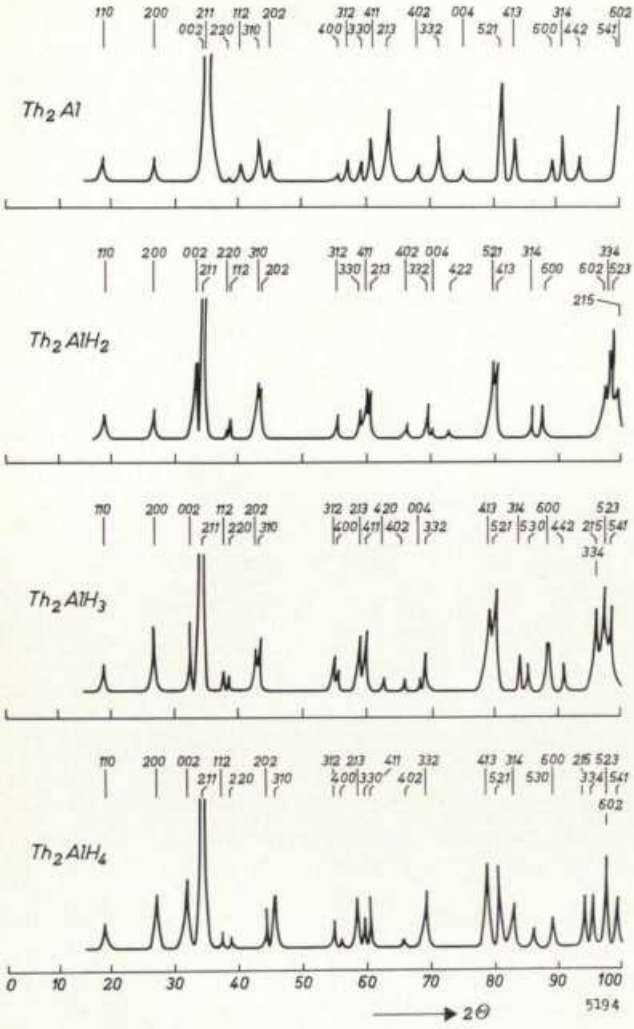

Fig. 4. Debye-scherrerdiagrammen van Th_2Al, Th_2AlH_2, Th_2AlH_3 en Th_2AlH_4 met röntgenstraling van 1,79 Å. De intensiteit is uitgezet tegen de afbuigingshoek 2Θ. Boven de verstrooiingscurven zijn de millerindices weergegeven. De diagrammen verschillen onderling in de ligging van de diffactiemaxima (als gevolg van verandering in celgrootte), maar weinig in de intensiteiten daarvan. Dit laatste komt doordat de bijdrage van de waterstof hieraan gering is. Dit beeld wijzigt zich echter als we in plaats van röntgenstraling neutronen gebruiken: men vergelijke deze diagrammen met die in fig. 5.

komen over de plaats van de waterstofatomen. Er was dus reden om deze verbindingen te onderzoeken met neutronen.

Nu zijn van deze verbindingen alleen polykristallijne monsters beschikbaar, en in dit geval is er bij neutronendiffractie speciaal aan het werken met een waterstofhoudend preparaat een moeilijkheid verbonden. Er treedt dan nl. behalve de coherente verstrooiing, die aan de voorwaarde van Bragg voldoet, en die we hierboven uitsluitend hebben beschouwd, een sterke *in*coherente verstrooiing op, die de waarneming van de diffractiemaxima zeer bemoeilijkt. (De incoherente verstrooiing wordt in een Aanhangsel nader besproken. Ze bestaat daarin dat — afwijkend van het ideale geval — niet een volledige „uitdoving" plaatsvindt van al de verstrooiingsbijdragen in andere dan de Braggrichtingen.)

Daarom werd dit onderzoek niet met de hydriden gedaan, doch met de deuteriden, waarbij de incoherente verstrooiing veel minder sterk is. Men mag veilig aannemen dat de deuteriumatomen zich op dezelfde plaatsen in de deuteriden zullen bevinden als de waterstofatomen in de hydriden.

Een bijkomend voordeel van het werken met deuteriden in plaats van hydriden — gering overigens vergeleken bij het nadeel van de zoveel moeilijker bereiding — is, dat deuterium gunstiger is dan waterstof wat de verstrooiingslengte betreft, zoals een blik op tabel I leert.

Voor het neutronenonderzoek [9]) werden preparaten van verschillend deuteriumgehalte in een dunwandig buisje van 1 cm diameter gebracht en op de goniometer geplaatst. In *fig. 5* is voor de verschillende samenstellingen de waargenomen intensiteit, d.w.z. de met de telbuis gemeten impulsdichtheid, uitgezet tegen de verstrooiingshoek.

Vergelijking met de röntgendiffractiediagrammen in fig. 4 doet zien dat dezelfde opeenvolging van diffractiemaxima ontstaat. Er wordt dus inderdaad geen essentiële verandering in de kristalstructuur teweeggebracht door de vervanging van waterstof door deuterium. De (relatieve) intensiteiten van de maxima zijn nu echter geheel verschillend, hetgeen de grote bijdrage van het deuterium tot de verstrooiing wel zeer direct illustreert.

Vergelijking van de waargenomen intensiteiten met de voor verschillende modellen berekende, levert de plaatsen van de deuterium- (en dus de waterstof-) atomen in de elementaire cel. Ze blijken, zoals reeds in [1]) verondersteld werd, te liggen in de tetraëdrische holten tussen de thoriumatomen. Van deze holten bestaan er vier voor elk aluminiumatoom, hetgeen in overeenstemming is met het feit dat het hoogste bereikte waterstofgehalte overeenkomt met de samenstelling Th_2AlH_4. In *fig. 6*, die de elementaire cel van Th_2Al voorstelt, zijn vier van deze tetraëders getekend, en daarin zijn de gevonden posities van de waterstof aangegeven.

Neutronendiffractie door magnetische atomen en ionen

Het neutron heeft een spin, d.w.z. een mechanisch moment, waarmee een magnetisch moment gepaard gaat. Dit heeft ten gevolge dat, in tegenstelling met het eerder beweerde, er in bepaalde gevallen wèl een wisselwerking mogelijk is tussen het neutron en

[9]) J. Bergsma, J. A. Goedkoop en J. H. N. van Vucht, verschijnt in Acta cryst.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

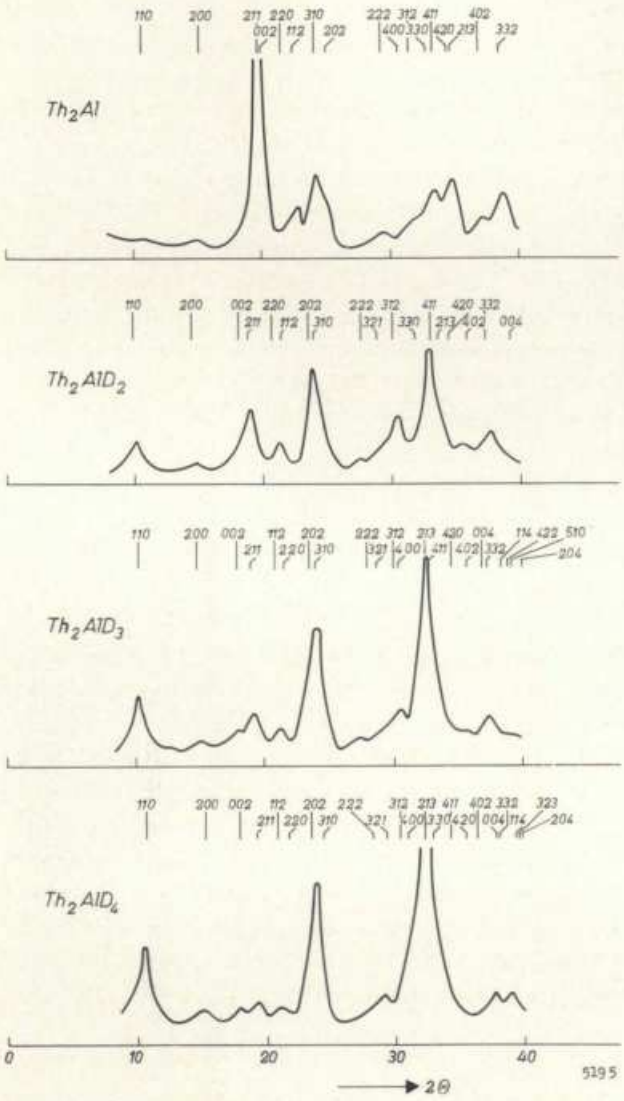

Fig. 5. Debye-scherrerdiagrammen van Th_2Al, Th_2AlD_2, Th_2AlD_3 en Th_2AlD_4, verkregen met neutronen van 1,03 Å. De grote verschillen in intensiteit van overeenkomstige diffractiemaxima demonstreren dat de bijdrage van het deuterium aan de verstrooiing zeer groot is.

de elektronenwolk, nl. als deze laatste drager is van een resulterend magnetisch moment. De verstrooiing die dan optreedt, is in het algemeen van dezelfde orde van grootte als die door de atoomkern, zodat, indien een kristal magnetische atomen of ionen bevat, men verstrooiing van beiderlei oorsprong kan waarnemen.

Het karakter van de magnetische verstrooiing is sterk afhankelijk van de mate waarin de magnetische momenten van de atomen onderling georiënteerd zijn. Is het beschouwde kristal paramagnetisch, d.w.z. is er geen voorkeursoriëntatie, dan is de magnetische verstrooiing niet, zoals die door de kernen, in diffractiemaxima geconcentreerd, doch van diffuse aard. Zoals bekend, doet zich echter bij vele paramagnetische stoffen het verschijnsel voor dat beneden een bepaalde temperatuur de wisselwerking tussen naburige atomen het wint van de warmtebeweging, zodat over zekere gebieden in het kristal (de magnetische domeinen) alle atomaire magnetische momenten zich parallel dan wel tegengesteld aan een bepaalde richting oriënteren. Wijzen alle momenten in dezelfde richting, dan spreekt men van ferromagnetisme; wijst een deel in de ene richting, de rest in de tegengestelde, dan spreekt men van antiferromagnetisme of van ferrimagnetisme, al naar gelang het resulterend moment per elementaire cel nul is of daarvan verschillend. In geval van ferromagnetisme en ferrimagnetisme kan men door aanleggen van een voldoend sterk magneetveld de domeinen beïnvloeden en een uitwendig waarneembare magnetisatie teweegbrengen.

De magnetische neutronenverstrooiing van zulke kristallen met geordende magnetische momenten vertoont nu wèl een grote gelijkenis met de tot dusver beschouwde verstrooiing door de kernen, die we thans ter onderscheiding de nucleaire zullen noemen, d.w.z. ze is ook geconcentreerd in diffractiemaxima, die optreden indien voldaan is aan de voorwaarde van Bragg. De berekening van de intensiteiten daarvan gebeurt op dezelfde manier als voor de nucleaire verstrooiing, waarbij in plaats van de nucleaire verstrooiingslengte b nu de grootheid

$$p = 0{,}539 \times S\, f(\sin\Theta/\lambda), \quad \ldots \quad (7)$$

moet worden gebruikt (uitgedrukt in 10^{-12} cm).

In het rechterlid [10]) is S het effectieve spin-quan-

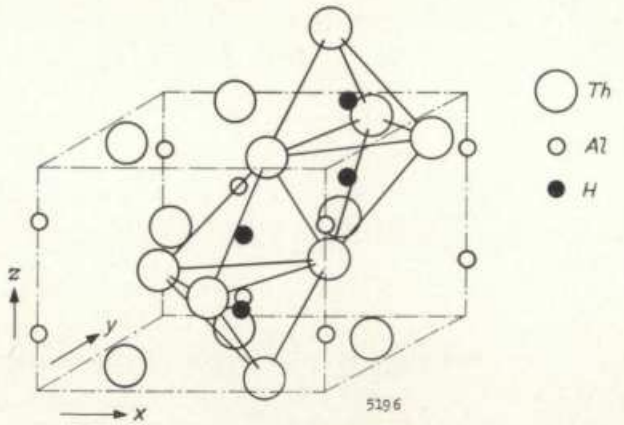

Fig. 6. De elementaire cel van Th_2Al. Uit neutronendiffractie blijkt dat de opgenomen gasatomen zich nestelen in de holten van de door thoriumatomen gevormde tetraëders; er zijn vier van zulke tetraëders, met geabsorbeerd waterstofatoom, getekend. Als alle deze holten met waterstof gevuld zijn, heeft de verbinding de formule Th_2AlH_4. Deze verbinding heeft nog dezelfde structuur als Th_2Al, d.w.z. dezelfde relatieve ligging van de thorium- en aluminiumatomen, alleen is er enig verschil in celgrootte.

[10]) Onze beschouwing geldt voor het geval dat het magnetische moment geheel te danken is aan de elektronenspins, en niet aan de baanbeweging der elektronen.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

tumgetal, dat een maat is voor het magnetische moment van het verstrooiende atoom (gemeten in bohrmagnetonen, bedraagt dit 2S). In antiferromagnetische en ferrimagnetische stoffen moet aan S het positieve of het negatieve teken worden toegekend, al naar het moment naar de ene dan wel de andere richting wijst. De andere factor, $f(\sin\Theta/\lambda)$, is de zg. magnetische vormfactor, die 1 bedraagt voor afbuigingshoek nul en die bij toenemende afbuigingshoek kleiner wordt. In tegenstelling met de nucleaire verstrooiing voor neutronen is de magnetische dus wel afhankelijk van de verstrooiingshoek, en zij vertoont in dit opzicht meer overeenkomst met de röntgenverstrooiing. De oorzaak is uiteraard dat ook de magnetische neutronenverstrooiing toe te schrijven is aan een elektronenwolk, die een uitgebreidheid heeft van de orde van 1 Å.

Overigens is de hoekafhankelijkheid van deze vormfactor niet dezelfde als die van de eerder ingevoerde röntgenverstrooiingslengte c. Deze laatste heeft nl. betrekking op de gehele elektronenwolk rond de kern. Die wolk bestaat uit afzonderlijke schillen, en het magnetisch moment, indien aanwezig, is toe te schrijven aan het niet geheel gevuld zijn van één van die schillen (in het geval van Fe en Mn b.v. de 3d-schil). Het zijn dan ook alleen de elektronen in deze schil die de magnetische neutronenverstrooiing veroorzaken, en dus wordt ook de magnetische vormfactor $f(\sin\Theta/\lambda)$ door de radiale dichtheidsverdeling van alleen die elektronen bepaald.

Op dezelfde wijze als de nucleaire verstrooiingsamplitude, die we nu F_{nucl} zullen noemen, werd samengesteld uit de verstrooiingslengten b van de in het kristal aanwezige atoomkernen, elk vermenigvuldigd met de juiste fazefactor, kunnen nu de magnetische verstrooiingslengten (7) van de verschillende magnetische atomen worden samengevoegd tot een magnetische amplitude, F_{magn}.

Bij de meeste kristallen is er geen verschil tussen de periodiciteit van de magnetische en de andere atomen. De interferentievoorwaarden zijn dan voor de magnetische en voor de nucleaire verstrooiing dezelfde, zodat de waargenomen diffractie-intensiteiten samengesteld zullen zijn uit een nucleair en een magnetisch deel. De theorie leert dat de totale intensiteit dan evenredig is met

$$I = F_{\text{nucl}}^2 + (\sin\alpha)^2 F_{\text{magn}}^2. \quad . \quad . \quad . \quad (8)$$

Daarin is α de hoek tussen de voorkeursrichting van de magnetische momenten in het kristal en de loodlijn op de roostervlakken die voor de desbetreffende verstrooiing aansprakelijk zijn (d.i. de bissectrice van de hoek tussen invallende en verstrooide bundel). Is deze hoek α nul, dan is de verstrooiing zuiver nucleair.

In sommige gevallen van antiferromagnetisme en ferrimagnetisme zijn de magnetische momenten van op één herhalingsafstand van elkaar gelegen atomen tegengesteld gericht en liggen gelijk gerichte momenten steeds tweemaal deze afstand van elkaar. In dat geval is er dus wèl een verschil in periodiciteit, en wel is de elementaire cel in magnetisch opzicht groter dan in nucleair, en er zullen *extra-reflexies optreden van zuiver magnetische oorsprong*. Het bekendste voorbeeld hiervan is het kubische MnO, waarin de elementaire cel bij antiferromagnetische ordening in alle drie kubusrichtingen verdubbeld wordt [11]). Overigens zijn kort geleden met neutronendiffractieonderzoek gevallen van magnetische ordening aan het licht gekomen (b.v. bij metallisch holmium), waarbij naburige magnetische momenten andere hoeken dan 0° of 180° met elkaar maken, hetgeen aanleiding geeft tot een spiraalvormige rangschikking [12]).

Men zou zich erover kunnen verwonderen dat in (8) eenvoudig de intensiteiten van de nucleaire en de magnetische verstrooiingscomponent worden opgeteld. Men zou zich ook kunnen voorstellen dat men eerst de amplituden zou moeten optellen en hun som kwadrateren. Dit laatste is inderdaad de juiste weg indien de neutronen gepolariseerd zijn, d.w.z. indien men door een kunstgreep de spins van de invallende neutronen gelijk richt. De neutronen zoals die uit de reactor komen, zijn uiteraard ongepolariseerd en dan is de additieve samenstelling van de intensiteiten juist. In het volgende zullen we alleen met dit geval te maken hebben.

De magnetische verstrooiing van neutronen levert de mogelijkheid om in een geordend magnetisch kristal de waarde van de grootheden S van de verschillende atomen te bepalen, d.w.z. richting en grootte van de onderscheiden atomaire magnetische momenten vast te stellen. In hetgeen volgt, zullen we van deze mogelijkheid, die uiteraard geen equivalent in de röntgendiffractie heeft, twee voorbeelden behandelen.

Tweede voorbeeld: de magnetische momenten van de Mn-atomen in de legering $Al_{0,89}Mn_{1,11}$ [13])

In de legering $Al_{0,89}Mn_{1,11}$ zijn de aluminium- en mangaanatomen op een bepaalde wijze statistisch verdeeld over de twee ervoor beschikbare posities in de tetragonale elementaire cel, nl. het hoekpunt (A) en het midden (B) van de cel. Uit de röntgendiffractie is afgeleid dat de zg. ordeparameter r, die

[11]) C. G. Shull en J. S. Smart, Phys. Rev. **76**, 1256, 1949.
[12]) Persoonlijke mededeling van W. C. Koehler.
[13]) P. B. Braun en J. A. Goedkoop, verschijnt in Acta cryst.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

gedefinieerd is als de gemiddelde fractie Al-atomen op de A-plaatsen, 0,03 bedraagt. Dit is in het aangehaalde artikel [1]) uiteengezet. Daar is ook vermeld dat de legering tot een permanente magneet gemaakt kan worden, zodat er domeinen moeten zijn waarbinnen de magnetische momenten van de mangaanatomen geordend zijn. De volgende vragen doen zich dan voor:

a) Langs welke kristallografische richting zijn de magnetische momenten bij voorkeur gericht (bij afwezigheid van een richtend magneetveld, zodat ze vrij zijn zich in te stellen)?

b) Indien zich op een B-plaats een mangaanatoom bevindt, is het magnetische moment daarvan dan gelijk of tegengesteld gericht aan dat van de mangaanatomen op de meeste van de omringende A-plaatsen; met andere woorden, is de koppeling tussen deze buren ferromagnetisch of ferrimagnetisch? Op grond van röntgendiffractieonderzoek en metingen van de verzadigingsmagnetisatie van op verschillende wijze behandelde monsters, is het vermoeden uitgesproken dat dit laatste het geval zou zijn.

c) Hoe groot is het magnetisch moment per Mn-atoom?

Het antwoord op deze vragen moet gehaald worden uit het met neutronen verkregen debye-scherrerdiagram, dat in *fig. 7* is weergegeven. De daaruit

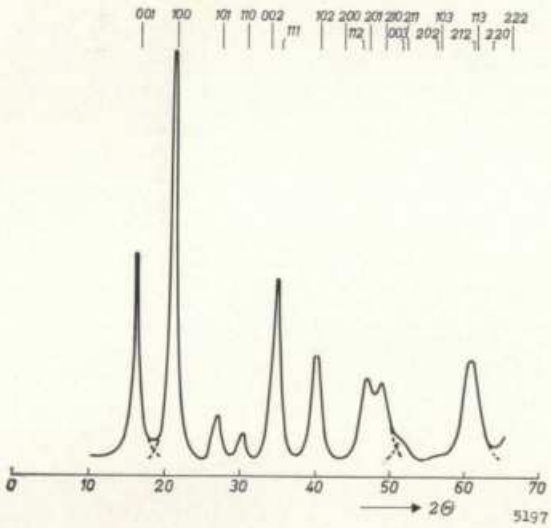

Fig. 7. Debye-scherrerdiagram van de legering $Al_{0,89}Mn_{1,11}$ met neutronen van 1,03 Å. Bij grote afbuigingshoek 2Θ worden de intensiteiten vrijwel geheel door nucleaire verstrooiing bepaald. Ze zijn zwak voor $h + k + l =$ even, en sterk voor $h + k + l =$ oneven. Dit is een gevolg van de voorkeur voor de hoekpunten en het midden van de tetragonale elementaire cel van resp. de mangaan- en aluminium atomen èn van de tegengestelde verstrooiingslengte van deze atomen, zie tabel I. (Bij röntgendiffractie, waar dit verschil van teken niet bestaat, zijn de reflexies sterk indien $h + k + l =$ even, en zwak indien $h + k + l =$ oneven, dus net andersom als bij neutronendiffractie.) De reflexies 100, 101 en 110, echter niet 001, bevatten naast de nucleaire ook een aanzienlijke magnetische bijdrage.

door planimetreren van pieken afgeleide intensiteiten zijn in de laatste kolom van *tabel II* vermeld.

Zowel in de figuur als in de tabel zijn de diffractiemaxima gekarakteriseerd door de millerindices h, k en l. We herinneren nog even aan de betekenis hiervan: zijn a, b en c de ribben van de elementaire cel (een parallellepipedum), dan snijden twee opeenvolgende roostervlakken met millerindices h, k en l op de drie ribben respectievelijk het stuk a/h, b/k en c/l af. De elementaire cel is hier tetragonaal; $c = 3{,}54$ Å is de tetragonale as; de assen $a = b = 2{,}77$ Å staan daar loodrecht op.

Tabel II. Waargenomen en berekende intensiteiten van neutronenreflexies van polykristallijn $Al_{0,89}Mn_{1,11}$.

Millerindices *hkl*	Magnet. hoekfactor $(\sin\alpha)^2$	Magnet. vormfactor $f(\sin\Theta/\lambda)$	Berekende intensiteiten: nucleaire bijdrage	Berekende intensiteiten: magnetische bijdrage	Berekende intensiteiten: totaal		Waargenomen intensiteiten *)
001	0,00	—	6,56	0,00	6,56		6,70±0,12
100	1,00	0,68	8,00	3,59	11,59		11,66±0,11
101	0,62	0,54	0,22	0,98	1,20		1,32±0,08
110	1,00	0,45	0,09	0,44	0,53		0,73±0,07
002	0,00	—	0,03	0,00	0,03	6,68	6,47±0,12
111	0,77	0,34	6,12	0,53	6,65		
102	0,29	0,28	4,61	0,10	4,71		4,52±0,10
200	1,00	0,20	0,05	0,05	0,10		0,12±0,06
112	0,45	0,19	0,08	0,03	0,11		
201	0,86	0,18	3,45	0,10	3,55		
210	1,00	0,15	3,18	0,07	3,25	7,79	8,20±0,19
003	0,00	—	0,73	0,00	0,73		
211	0,89	0,11	0,12	0,03	0,15		
202	—	—	0,05	—	0,05	0,11	0,14±0,08
103	—	—	0,05	—	0,05		
212	—	—	4,33	—	4,33	6,48	6,26±0,12
113	—	—	2,15	—	2,15		

*) De in deze kolom aangegeven foutengrenzen hebben alleen betrekking op de waarschijnlijke statistische telfout in het aantal neutronen.

Wat de berekening van de intensiteit van de reflexies betreft, zijn er hier slechts twee gevallen te onderscheiden, nl. reflexies welke beantwoorden aan roostervlakken met $h + k + l =$ even en aan die met $h + k + l =$ oneven; kortheidshalve zullen we ze als „even" en „oneven" reflexies aanduiden. Het is gemakkelijk in te zien dat, wanneer de A-plaats in een roostervlak van een bepaald stel ligt, de B-plaats voor een even reflexie ook in een roostervlak van hetzelfde stel ligt, voor een oneven reflexie daarentegen midden tussen de roostervlakken van dat stel. Met andere woorden: in het geval van even reflexies moeten de verstrooiingsbijdragen van A- en B-posities bij elkaar worden opgeteld, terwijl voor oneven reflexies het verschil moet worden genomen.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Voor de analyse van het diffractiediagram begint men bij grote verstrooiingshoeken. Hier zijn nl., ten gevolge van de besproken afneming van de magnetische verstrooiing, de intensiteiten van vrijwel zuiver nucleaire oorsprong. Evenals bij röntgendiffractie worden de gemeten verstrooiingsintensiteiten vergeleken met de intensiteiten die berekend zijn voor verschillende waarden van de ordeparameter r. De beste overeenstemming werd gevonden voor $r = 0{,}03$, hetgeen binnen de meetnauwkeurigheid overeenstemt met de door röntgendiffractie gevonden waarde. De hieraan beantwoordende verdeling van de Al- en Mn-atomen over de hoekpunten en middens van de elementaire cel is voorgesteld in *fig. 8*.

Met deze uitkomst kunnen nu de nucleaire bijdragen tot alle intensiteiten, ook die bij kleine verstrooiingshoeken, berekend worden. Men vindt ze in de vierde kolom van tabel II.

Vergelijking hiervan met de gemeten intensiteiten doet duidelijk zien dat er bij kleine verstrooiingshoeken nog aanzienlijke magnetische bijdragen moeten zijn. Laten we nu eens aannemen dat de magnetische momenten van Mn-atomen op A- en B-plaatsen parallel zijn gericht. Voor de gevonden waarde van r bevinden zich op A-plaatsen gemiddeld 0,97 Mn-atomen, en dus, gezien de totale samenstelling, op B-plaatsen 0,14. Voor even reflexies moeten de verstrooiingsbijdragen worden opgeteld; de verstrooiingsamplitude per elementaire cel wordt dus:

$$F_{\text{magn}} = 1{,}11\, p \quad (\text{met } h+k+l \text{ even}),$$

waarin p de magnetische verstrooiingslengte per Mn-atoom is, te berekenen volgens verg. (7). Voor oneven reflexies (nog steeds met de twee magnetische momenten parallel) moeten we de verstrooiingsbijdragen van elkaar aftrekken en er komt:

$$F_{\text{magn}} = 0{,}83\, p \quad (\text{met } h+k+l \text{ oneven}).$$

Zijn daarentegen de momenten op B-plaatsen tegengesteld aan die op A-plaatsen, dan moet, krachtens het bij verg. (7) opgemerkte, aan de bijdrage van de B-positie het negatieve teken worden gegeven. Als gevolg hiervan moeten de twee uitkomsten hierboven worden verwisseld.

Zoals uit tabel II blijkt, kan voor de allereerste reflexie (001) de waargenomen intensiteit binnen de foutengrens worden verklaard door de nucleaire bijdrage alléén. Uit het bovenstaande volgt dat F_{magn} voor deze reflexie niet nul is en we moeten derhalve aannemen dat voor deze reflexie de hoek α uit verg. (8) nul is.

Uit de millerindices blijkt dat deze reflexie berust op roostervlakken loodrecht op de tetragonale c-as. Aangezien α de hoek is tussen de loodlijn op de roostervlakken en de voorkeursrichting van de magnetische momenten in het kristal, mag men dus concluderen dat de magnetische momenten langs de c-as gericht moeten liggen, waarmee vraag (a) is beantwoord.

Gewapend met deze kennis kunnen we $(\sin \alpha)^2$ uit verg. (8) voor de overige reflexies berekenen: de resultaten vormen de tweede kolom in tabel II. In de derde kolom staan waarden van de magnetische vormfactor $f(\sin \Theta/\lambda)$, ontleend aan de uitkomsten van neutronenonderzoek van overeenkomstige mangaanverbindingen.

Gebruik makend van deze gegevens en van de vergelijkingen (7) en (8), werd nu voor de drie reflexies met de grootste magnetische bijdrage (100, 101, 111) de waarde van het effectieve spin-quantumgetal S (zie verg. (7)) berekend die de beste overeenstemming gaf met de waargenomen intensiteiten, en wel voor de beide mogelijke onderlinge oriëntaties van de spins op A- en B-plaatsen. Het bleek dat in het geval van antiparallelle oriëntatie de drie aldus verkregen S-waarden duidelijk beter met elkaar overeenstemden dan voor het geval van parallelle oriëntatie. Hieruit werd geconcludeerd dat de spins tegengesteld gericht zijn, waarmee ook vraag (b) is afgedaan, en wel in overeenstemming met het al uitgesproken vermoeden (ferrimagnetische kop-

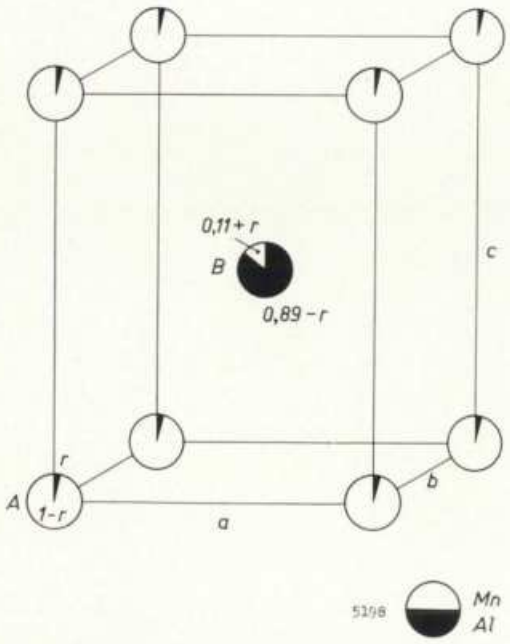

Fig. 8. De verdeling der aluminium- en mangaanatomen over de hoekpunten en middens van de elementaire cel van de verbinding $Al_{0,89}Mn_{1,11}$. De gemiddelde fractie r van de aluminiumatomen op de hoekpunten, hier als sector van een cirkel uitgedrukt, is ongeveer 0,03. Deze waarde is zowel met röntgen- als met neutronendiffractie gevonden.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

peling). De aldus gevonden waarde van S was 0,97, zodat het magnetische moment van de Mn-atomen 1,94 bohrmagnetonen is, hetgeen het antwoord is op vraag (c).

In de vijfde kolom van tabel II zijn de op grond van dit model berekende magnetische bijdragen tot de intensiteiten opgenomen; de som van nucleaire en magnetische bijdragen in de zesde kolom blijkt nu goed overeen te stemmen met de gemeten waarden. Een verdere bevestiging is nog dat de uit deze structuur berekende waarde van de verzadigingsmagnetisatie kwantitatief klopt met het experiment.

Derde voorbeeld: de magnetische structuur van Y-$Ba_2Zn_2Fe_{12}^{III}O_{22}$

Als tweede voorbeeld van een magnetisch structuuronderzoek nemen we het onderzoek van Y-$Ba_2Zn_2Fe_{12}^{III}O_{22}$ (Y duidt hier het structuurtype aan). In dit geval was een monokristal beschikbaar; zonder dat zou het neutronenonderzoek van deze ingewikkelde verbinding ook niet goed mogelijk zijn geweest. Ook deze structuur is in [1]) besproken: de elementaire cel is hexagonaal, met zeer lange c-as (43,6 Å), en bevat in totaal 36 ijzeratomen, die alle een magnetisch moment dragen. Uit magnetische metingen weet men dat de stof ferrimagnetisch is en behoort tot de klasse die bekend is onder de naam „ferroxplana"; in deze klasse staan de magnetische momenten loodrecht op de c-as. Op grond van theoretische overwegingen had Gorter [14]) reeds een model van de magnetische structuur opgesteld, dat is weergegeven in *fig. 9*.

Het neutronenonderzoek [15]) werd in de eerste plaats ondernomen om de juistheid van dit model te verifiëren. Dit werd gedaan aan de hand van de intensiteiten van 18 reflexies die ontstaan door spiegeling aan roostervlakken loodrecht op de c-as (003, 006, ... , $00\bar{5}4$; de tussenliggende zijn door de kristalsymmetrie „verboden"). Aangezien ook de magnetische momenten loodrecht op de c-as staan, is voor zulke reflexies de hoek α uit (8) steeds 90°, zodat de magnetische verstrooiing het maximaal mogelijke bijdraagt.

Experimenteel is het meten van een dergelijke serie intensiteiten zeer eenvoudig doordat de reflexies alle in één vlak gelegen zijn. Het kristal hoeft slechts eenmaal met de c-as in de juiste (horizontale) richting worden ingesteld, waarna alle reflexies achtereenvolgens bij één zwaai van de telbuis worden geregistreerd.

De gevonden intensiteiten werden nu vergeleken met de som van de nucleaire intensiteit (berekend uit het model van Braun [16])) en de magnetische intensiteit (uit het model van Gorter [14])). Inderdaad werd goede overeenstemming verkregen, zodat de voorgestelde magnetische structuur door deze betrekkelijk eenvoudige meting bevestigd mag worden

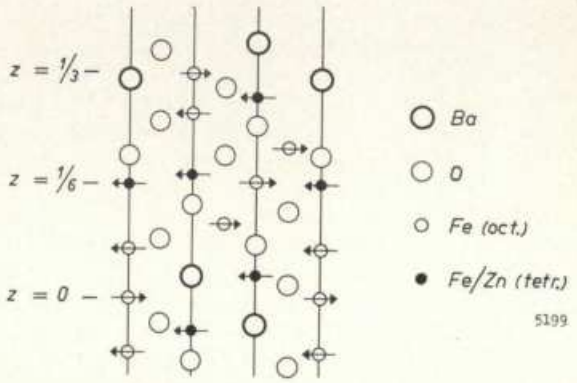

Fig. 9. De magnetische structuur van Y-$Ba_2Zn_2Fe_{12}O_{22}$, zoals voorgesteld door Gorter [14]) en bevestigd door neutronendiffractie. De figuur stelt een doorsnede langs het (110)-vlak voor; z geeft de c-coördinaat in fracties van de c-as (hexagonale kristalas) aan. De richtingen van de magnetische momenten van de ijzeratomen, die alle loodrecht op de hexagonale kristalas staan, zijn door pijltjes aangegeven.

geacht. Tevens werd, wat de nucleaire bijdrage betreft, nog eens de door Braun getrokken conclusie bevestigd dat de zinkatomen te zamen met een gelijk aantal ijzeratomen over twee verschillende kristallografische posities verdeeld zijn. Zoals uit de in tabel I opgenomen neutronen- en röntgenverstrooiingslengten van Zn en Fe blijkt, zijn de neutronenintensiteiten gevoeliger op dit speciale punt dan de röntgenintensiteiten.

Daar de intensiteit (in fotonen per cm^2 per seconde) van een willekeurige röntgenbuis nog altijd enige machten van tien groter is dan de neutronenflux van de grootste kernreactoren, en bovendien kernreactoren nog weinig talrijk zijn, gebruikt men neutronendiffractie altijd als een aanvullende techniek om die vragen te beantwoorden die de röntgendiffractie niet goed of helemaal niet kan oplossen. Aan een neutronenonderzoek gaat dus altijd röntgenwerk vooraf. In verband hiermee is er een nauwe samenwerking gewenst tussen de onderzoekingscentra waarin kernreactoren geplaatst zijn, en de laboratoria waarin zich de vaak zeer uiteenlopende structuurproblemen voordoen. De drie in

[14]) E. W. Gorter, Proc. Instn. Electr. Engrs. **104 B**, suppl. no. 5, 255, 1957.
[15]) J. A. Goedkoop, J. Hvoslef en M. Živadinović, Acta cryst. **12**, 476, 1959.
[16]) Zie P. B. Braun, Philips Res. Repts. **12**, 491, 1957, en b.v. G. H. Jonker, H. P. J. Wijn en P. B. Braun, Philips techn. T. **18**, 253, 1956.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

dit artikel behandelde voorbeelden kunnen als illustratie voor zo'n samenwerking worden beschouwd.

Aanhangsel: Incoherente verstrooiing

Bij de tot dusver beschouwde coherente verstrooiing aan kristallen dragen de atomen die zich op gelijke roosterplaatsen bevinden, alle met gelijke verstrooiingslengte aan de verstrooiing bij. Incoherente verstrooiing treedt op zodra *niet* alle met gelijke verstrooiingslengte bijdragen. Het is gemakkelijk in te zien dat er dan géén volledige „uitdoving" van al de verstrooiingsbijdragen in andere dan de Braggrichtingen ontstaat, zoals bij coherente verstrooiing. Het verschijnsel neemt men b.v. waar bij verstrooiing aan een isotopenmengsel. We zullen aan de hand van dit voorbeeld laten zien hoe men hierbij de coherente en de incoherente verstrooiingscomponent kan berekenen, en vervolgens terugkomen op het in de tekst genoemde geval (blz. 40).

Stel dat er op gelijke roosterplaatsen n atomen met een verstrooiingslengte b_1 en m atomen met een verstrooiingslengte b_2 aanwezig zijn. Dit komt op hetzelfde neer alsof op alle bedoelde roosterplaatsen een gelijke verstrooier aanwezig zou zijn met een verstrooiingslengte gelijk aan het gewogen gemiddelde

$$b_H = \frac{n}{n+m} b_1 + \frac{m}{n+m} b_2 \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (9)$$

(De index H is gekozen in verband met het geval waarom het ons te doen is.)

Deze gelijke verstrooiers brengen een verstrooiing teweeg die aan de voorwaarde van Bragg voldoet; hun verstrooiingslengte b_H noemt men de coherente verstrooiingslengte. Intussen blijft er dan op alle bedoelde plaatsen nog een restant, nl. op n plaatsen een verstrooiingslengte:

$$b_1 - b_H = \frac{m}{n+m}(b_1 - b_2);$$

en op m plaatsen een verstrooiingslengte:

$$b_2 - b_H = \frac{n}{n+m}(b_2 - b_1).$$

Deze restanten vertegenwoordigen een verstrooiing die niet aan de voorwaarde van Bragg voldoet en die geen voorkeur voor een bepaalde richting heeft. Elk restant geeft aanleiding tot een isotrope verstrooiing die onafhankelijk van de overige kan worden beschouwd, en men kan aan elk een werkzame doorsnede voor verstrooiing toeschrijven (zie blz. 37). Hiervan kan weer het gewogen gemiddelde worden berekend, dat aangeduid wordt als de *werkzame doorsnede voor incoherente verstrooiing*. Deze wordt:

$$\sigma_{H,inc} = 4\pi\left[\frac{n}{n+m}(b_1 - b_H)^2 + \frac{m}{n+m}(b_2 - b_H)^2\right] = \frac{nm}{(n+m)^2}(b_1 - b_2)^2. \quad . \quad . \quad . \quad (10)$$

Het is instructief daarnaast ook een *werkzame doorsnede voor coherente verstrooiing* in te voeren:

$$\sigma_{H,coh} = 4\pi b_H^2. \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (11)$$

Ten slotte kan men nog een *werkzame doorsnede voor de totale verstrooiing* definiëren, die de som van (10) en (11) is:

$$\sigma_{H,tot} = 4\pi\left[\frac{n}{n+m} b_1^2 + \frac{m}{n+m} b_2^2\right]. \quad . \quad . \quad (12)$$

Aangezien slechts de coherente verstrooiing ons iets over de structuur van een stof leert, kunnen we alleen van die stoffen de structuur bepalen waarbij de werkzame doorsnede voor incoherente verstrooiing niet te groot is, vergeleken met die voor coherente verstrooiing.

Keren we thans terug tot de in de tekst genoemde hydriden van Th_2Al. De hieraan optredende incoherente neutronenverstrooiing berust erop dat zowel het neutron als het verstrooiende proton een spin $\frac{1}{2}$ hebben. Er zijn daardoor twee manieren van verstrooiing mogelijk, nl. met de spins der deeltjes parallel, dan wel tegengesteld. De totale spin van het systeem proton plus neutron is bij parallelle instelling 1 en bij tegengestelde instelling 0, hetgeen met zich meebrengt dat de kans op het eerste 3× zo groot is als op het laatste (voor een verklaring hiervan zij de lezer naar elders verwezen [3]). Dit betekent dus dat bij verstrooiing van neutronen door een waterstofhoudend kristal in drie kwart van de ontmoetingen de spins van neutron en proton parallel staan en in een kwart der ontmoetingen tegengesteld.

De verstrooiingslengten zijn voor de twee gevallen zeer verschillend: we duiden ze resp. weer aan met b_1 en b_2:

$$b_1 = +\,1{,}04\times10^{-12}\text{ cm}; \quad b_2 = -4{,}7\times10^{-12}\text{ cm}.$$

Met verg. (9), (10) en (11) berekenen we dat $\sigma_{H,coh} = 1{,}8\times10^{-22}\,\text{cm}^2$ en dat $\sigma_{H,inc} = 79\times10^{-22}\,\text{cm}^2$.

Hieruit is de in de tekst genoemde moeilijkheid wel duidelijk: van de, op zichzelf zeer sterke, verstrooiing door de waterstof draagt slechts ruim 2% tot de interferentiemaxima bij; de rest geeft een isotrope verstrooiing, die zich uit als een continue ondergrond in de diffractiediagrammen. Dit is vooral funest bij polykristallijne preparaten, doordat daarbij in elk interferentiemaximum bovendien slechts een klein deel der kristallieten meedoet, terwijl toch het gehele preparaat tot de incoherente verstrooiing bijdraagt. Bij een monokristal ligt dit veel gunstiger en kan men de waterstofdiffractie wel waarnemen.

Het hier voor waterstof besproken verschijnsel doet zich ook voor bij verstrooiing door andere kernen die een van nul verschillende kernspin hebben. Zo is ook bij vanadium de coherente verstrooiing door deze oorzaak vrijwel niet waarneembaar. Bij deuterium, met kernspin 1, is $\sigma_{D,inc} = 2{,}0\times10^{-24}\,\text{cm}^2$, $\sigma_{D,coh} = 5{,}4\times10^{-24}\,\text{cm}^2$, zodat daar de verstrooiing grotendeels wèl tot interferentie in staat is.

Samenvatting. Door collimeren en selecteren van neutronen die uit een kernreactor door een kanaal naar buiten komen, krijgt men een monochromatische bundel neutronen (d.w.z. neutronen van één bepaalde snelheid). Van een te onderzoeken preparaat dat men in deze bundel plaatst, meet men de verstrooiingsintensiteit in verschillende richtingen met een telbuis gevuld met BF_3. Verder kunnen analoge methodes als bij röntgendiffractie worden toegepast om uit het opgenomen diffractiediagram conclusies betreffende de kristalstructuur te trekken. Punten van overeenkomst en verschil met röntgendiffractie worden in dit artikel besproken. De verstrooiing vindt in het algemeen plaats aan atoomkernen, in bijzondere gevallen aan elektronen, nl. indien deze dragers zijn van een resulterend magnetisch moment. Men past neutronendiffractie vooral toe voor a) het lokaliseren van waterstofatomen; b) het onderscheiden tussen atomen met opeenvolgende atoomnummers, die met röntgendiffractie moeilijk onderscheidbaar zijn; c) het bepalen van de oriëntatie van magnetische momenten. Van elk dezer gevallen wordt een voorbeeld besproken (waarvan het voorbereidende röntgenwerk reeds eerder in dit tijdschrift beschreven is). O.a. is met neutronendiffractie de ingewikkelde magnetische structuur bepaald van de verbinding Y-$Ba_2Zn_2Fe^{III}{}_{12}O_{22}$, waarbij een bevestiging is verkregen van het op theoretische gronden door Gorter opgestelde model.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

DOSISMETERS VOOR RÖNTGENSTRALING

door J. HESSELINK *) en K. REINSMA *). 621.386.82:615.849.5-015.3

De laatste jaren wint de overtuiging veld dat het meten van röntgendoses niet beperkt moet blijven tot de therapie, maar dat het ook van belang is de kleine bij de diagnostiek toegediende doses ongeveer te kennen. In onderstaand artikel vindt men, na een behandeling van dosismeters voor gebruik bij de therapie, een gemakkelijk hanteerbaar instrument beschreven waarmee men deze doses bepalen kan. Met dit instrument meet men — dit in tegenstelling tot de therapiedosismeters — de in totaal op de patiënt gevallen energie. Het gebruik van het instrument zal, behalve voor het meten van doses als zodanig, de röntgenologen ook van dienst kunnen zijn bij het streven naar zuinigheid met röntgenstraling.

Inleiding

Voor een zo verantwoord mogelijk gebruik van röntgenstraling in de geneeskunde, is het noodzakelijk de aan de patiënten toegediende hoeveelheid straling met een zekere nauwkeurigheid te kennen. Bij therapeutische behandelingen geldt dit in de eerste plaats iedere patiënt individueel; de optimaal werkzame dosis is hier soms niet veel kleiner dan de maximaal toelaatbare. De toelaatbare onzekerheid bedraagt hier dan ook niet meer dan 3 tot 5%. Bij de diagnostiek heeft men ook te letten op de hoeveelheid straling die de bevolking als geheel ontvangt. Weliswaar is hier de aan één patiënt per keer toegediende dosis in de regel klein, maar anderzijds wordt in de hoog ontwikkelde landen een onderzoek met röntgenstralen als diagnostische methode op zeer grote schaal toegepast. Van de totale hoeveelheid straling die in deze landen door medisch toedoen op de geslachtsklieren (gonaden) van de bevolking terechtkomt (de zg. gonadendosis), komt dientengevolge niet minder dan 75 tot 90% voor rekening van de diagnostiek. Daar deze hoeveelheid in sommige van de genoemde landen reeds ongeveer gelijk is aan die welke afkomstig is van de natuurlijke bronnen (kosmische straling, radioactiviteit van de bodem en van bouwmaterialen, ^{40}K en ^{14}C die zich in het menselijk lichaam bevinden, enz.), is voorzichtigheid geboden. Men komt nl. steeds meer tot de overtuiging dat ook de kleine bij de diagnostiek aan de geslachtsklieren meegedeelde doses door hun cumulatief effect voor de bevolking in zijn geheel in genetisch opzicht schadelijk kunnen zijn. Daar bovendien het gebruik van röntgenstraling voor diagnostische doeleinden nog steeds toeneemt, lijkt het wenselijk het meten van de toegediende doses niet te beperken tot de therapeutische bestralingen. Het regelmatig meten van doses in de diagnostiek zal het de arts mogelijk maken om „zuiniger" manieren van onderzoek te vinden en kan leiden tot de ontwikkeling van nieuwe apparaten die eveneens de arts in staat stellen meer informatie te verkrijgen met een kleinere dosis [1]).

Wat betreft de fysische grootheid waarmee men het biologische effect van de straling het beste in betrekking kan brengen, is men thans algemeen van opvatting dat dit *de door de patiënt geabsorbeerde energie* is [2]). Daar men deze energie niet direct kan meten, moet men trachten de grootte ervan af te leiden uit de meting van een of ander fysisch of chemisch verschijnsel dat door de straling wordt teweeggebracht.

Een aanmerkelijk aantal methodes en instrumenten voor het meten van doses is in de loop der jaren ontwikkeld en toegepast. Men denke slechts aan de fotografische plaat, de ionisatiekamer, de Geiger-Müller-teller, de proportionele telbuis en de scintillatieteller; nieuwe mogelijkheden bieden de omzetting van ferro- in ferri-ionen in een geschikte ijzerverbinding, de verkleuring van bepaalde glassoorten en de bij bestraling optredende weerstandsverandering van cadmiumsulfide. We zullen ons in dit artikel echter uitsluitend bezighouden met instrumenten waarvan de werking berust op het feit dat röntgenstraling bij het passeren van een gas — in casu: lucht — een meer of minder sterke ionisatie teweegbrengt en waarmee de door de gevormde ionen gedragen lading gemeten wordt. Deze instrumenten zijn in principe niets anders dan met gas gevulde ruimten waarin twee elektrodes zijn aangebracht.

Om de per tijdseenheid door ionisatie gevormde lading te meten, legt men tussen de elektrodes een

*) Hoofdindustriegroep Röntgen- en medische apparaten, Eindhoven.

[1]) Report of the United Nations Scientific Committee: „On the effects of atomic radiation", Ch. 3, New York 1958.

[2]) Recommendations of the International Commission on Radiological Units (I.C.R.U.) 1950. Zie Brit. J. Radiol. **24**, 54, 1951.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

potentiaalverschil aan en meet men de sterkte van de stroom die in de keten gaat vloeien. Men bepaalt aldus de ter plaatse van de kamer optredende zg. doseringssnelheid. De totale dosis vindt men hieruit door de stroom te integreren over de tijd die gedurende de bestraling verliep. Desgewenst kan men deze integratie door de schakeling zelf laten uitvoeren, en wel door in de keten een condensator op te nemen. Men behoeft dan na afloop van de bestraling slechts te meten tot welke spanning deze door de ionisatiestroom geladen is. De genoemde met gas gevulde ruimte die als stralingsdetector fungeert, duidt men in beide gevallen aan met de naam ionisatiekamer.

Wenst men op vele plaatsen tegelijk te kunnen meten, zonder evenzovele meetschakelingen te hoeven gebruiken, dan werkt men met de zg. condensatorkamers. Deze zijn in principe gelijk aan de ionisatiekamers, maar ze zijn tijdens de bestraling niet met een meetschakeling verbonden. Vóór de bestraling worden ze tot een zekere spanning geladen en men meet met welk bedrag de spanning gedurende de bestraling afgenomen is. Een condensatorkamer is dus in feite een geladen condensator, met een gas als diëlektricum, die gedurende de bestraling ten dele ontladen wordt. Het zal duidelijk zijn dat men met een condensatorkamer alleen doses kan meten. Wel is het natuurlijk mogelijk de gemiddelde doseringssnelheid te bepalen door de gevonden dosis te delen door de tijd die gedurende de bestraling verlopen is.

In dit artikel zullen we voorbeelden bespreken van beide soorten instrumenten: ionisatiekamers voor gebruik bij therapeutische bestralingen, condensatorkamers voor diverse doeleinden en ten slotte een bijzonder type ionisatiekamer voor gebruik in de diagnostiek.

De vraag doet zich thans voor, welke de relatie is tussen de energie die bij een bestraling door de patiënt — hetzij in totaal, hetzij op een zeer bepaalde plaats — geabsorbeerd wordt en de ionisatie die dezelfde straling in dezelfde tijd op dezelfde plaats teweegbrengt in vrije lucht. Helaas is deze relatie niet altijd eenvoudig. In het volgende zullen we daarom eerst het een en ander meedelen over de fysische verschijnselen die deze relatie bepalen, na de definities te hebben gegeven van twee dosisgrootheden waarmee men thans werkt en van de eenheden waarin deze worden uitgedrukt.

Dosisgrootheden en -eenheden; fysische grondslagen van de meetmethodes

De oudste nog in gebruik zijnde dosisgrootheid, die thans de naam bestralingsdosis draagt, is gebaseerd op de door de straling in lucht veroorzaakte ionisatie. De eenheid van bestralingsdosis, de röntgen, is: „een hoeveelheid röntgen- (of γ-) stralen, zodanig dat de daardoor per 0,001293 gram lucht teweeggebrachte elektronenemissie in lucht ionen van beiderlei teken vormt met een totale lading van één elektrostatische eenheid elk" [3]).

Ter toelichting willen we op twee dingen wijzen. Zoals gezegd, is de relatie tussen de zojuist gedefinieerde bestralingsdosis en de door de patiënt geabsorbeerde energie niet altijd eenvoudig. De reden dat men toch de ionisatie rechtstreeks als dosismaat gebruikt, is in de eerste plaats gelegen in het feit dat men de ionisatie gemakkelijk kan meten en deze maat zeer goed kan gebruiken voor het „in kaart brengen" van een stralingsveld (het bepalen van isodosiscurven enz.). Verder had men reeds in de beginperiode van de radiologie ontdekt dat er voor de toen het meest gebruikte soorten röntgenstraling een nauw verband bestond tussen de bestralingsdosis en het biologisch effect van deze soorten straling op spierweefsel.

In de tweede plaats iets over de woorden: per 0,001293 gram lucht teweeggebrachte elektronenemissie. Het ioniseren van de lucht door röntgenstraling geschiedt niet door de röntgenquanta zelf, maar door elektronen die door de röntgenquanta uit het atoomverband worden losgemaakt. Deze (zg. secundaire) elektronen nemen daarbij de energie van het desbetreffende quantum nagenoeg geheel (foto-effect) of gedeeltelijk (Compton-effect) over en krijgen zodoende een grote snelheid. Ze verliezen hun kinetische energie weer door wisselwerking met de atomen (moleculen) die ze passeren (aanslag, ionisatie). In lucht is het energieverlies gemiddeld 34 eV per gevormd ionenpaar. Men ziet dat volgens de definitie van de röntgen de bestralingsdosis dus niet gelijk is aan de ionisatie die optreedt in het volume dat door 0,001293 g lucht wordt ingenomen — dat is bij 0 °C en 76 cm Hg juist één cm^3 —, maar aan de ionisatie die veroorzaakt wordt door de in dit volume vrijgemaakte secundaire elektronen. In vrije lucht maakt dit geen verschil; in een kleine omsloten ruimte wèl. We komen hierop terug bij de bespreking van de eigenschappen van een ionisatiekamer.

De andere dosisgrootheid die thans in gebruik is, is gebaseerd op de energieabsorptie. Onder deze zg. „geabsorbeerde dosis" verstaat men — voor de officiële definities zie men [3]) — de op een bepaalde

[3]) Report of the I.C.R.U. 1956, Handbook 62, Nat. Bur. Standards, Washington. De hier gebruikte formulering is die van het Nederlandse „Veiligheidsbesluit ioniserende stralen".

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

plaats door de secundaire elektronen aan één massa-eenheid van de stof afgegeven energie. De eenheid waarin men deze dosis uitdrukt, is de „rad". Eén rad is 100 erg/gram ofwel 10^{-2} joule/kg. De totale door de patiënt geabsorbeerde stralingsenergie, de zg. „integrale geabsorbeerde dosis" — kortweg „integrale dosis" genoemd — drukt men meestal uit in kg rad (niet te verwarren met kilorad; één kg rad is dus 10^5 erg of 10^{-2} joule).

Bij de meeste tot nu toe bij therapeutische bestralingen uitgevoerde dosismetingen heeft men de bestralingsdosis gemeten en deze derhalve uitgedrukt in röntgen. Met behulp van tabellen en diagrammen kan hieruit de geabsorbeerde dosis, zowel in de huid als op dieper in het lichaam gelegen plaatsen, met voldoende nauwkeurigheid worden afgeleid. Helaas is dit bij het diagnostische gebruik van röntgenstralen niet of nauwelijks mogelijk. Dit is ten eerste te wijten aan de zeer grote variabiliteit van de optredende omstandigheden — buisspanning en -stroom, filter, grootte en plaats van het veld bij iedere handeling en de duur ervan — waardoor het meten van de bestralingsdosis nagenoeg onmogelijk wordt, en ten tweede aan het feit dat men bij de diagnostiek niet werkt met harde röntgenstraling, zoals meestal bij de therapie, maar met zachte.

Ten einde dit laatste nader te kunnen toelichten en tevens als inleiding op de bespreking van de door ons ontworpen dosismeter voor de diagnostiek, releveren we kort enkele punten betreffende de absorptie van röntgenstralen. Deze absorptie hangt af van de quantumenergie. Bij gegeven quantumenergie echter is de absorptie voor een bepaald materiaal per gram/cm² steeds dezelfde; vloeibaar water absorbeert van straling met een zekere quantumenergie per gram/cm² evenveel als waterdamp. (We denken aan absorptie in een dunne laag waarvan de dikte wordt uitgedrukt in de massa per cm².) Van stof tot stof kan de absorptie sterk verschillen. De grootte ervan wordt, behalve door de quantumenergie, bepaald door de atoomnummers — hoe hoger het atoomnummer hoe sterker de absorptie — en de relatieve hoeveelheid van de in de stof voorkomende elementen; de wijze waarop deze elementen chemisch met elkaar verbonden zijn, speelt nagenoeg geen rol. Zo is b.v. de absorptie per gram/cm² van lucht, water en waterig weefsel ongeveer dezelfde. De absorptie in botweefsel, waarin de zwaardere elementen calcium ($Z = 20$) en fosfor ($Z = 15$) voorkomen, is veel sterker. De grootheid waarmee men de absorptie per gram/cm² karakteriseert, de zg. massa-absorptiecoëfficiënt, is gelijk aan de lineaire (energie-)absorptiecoëfficiënt μ gedeeld door de dichtheid ϱ.

De wijze waarop de massa-absorptiecoëfficiënt van lucht varieert met de quantumenergie van opvallende monochromatische röntgenstraling, vindt men weergegeven in *fig. 1*. Zoals men ziet, loopt de curve voor harde straling nagenoeg horizontaal, maar voor zachtere straling varieert μ/ϱ sterk met de quantumenergie. Een soortgelijk verloop van μ/ϱ vindt men bij alle stoffen.

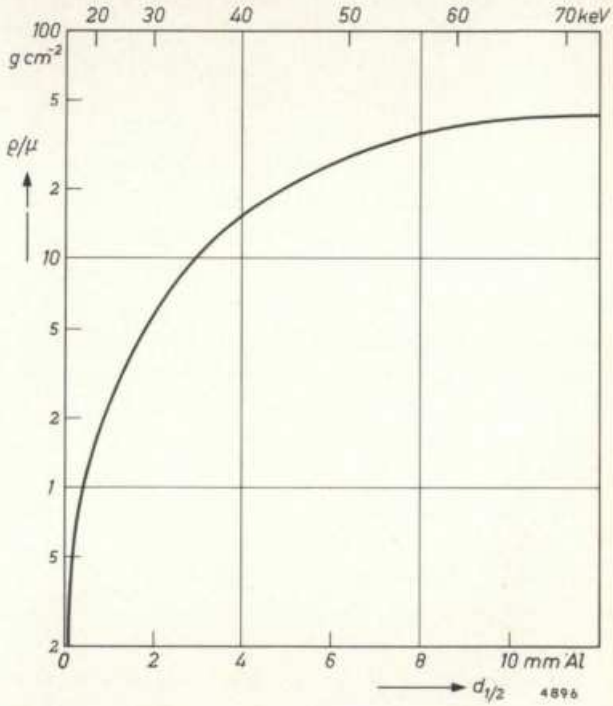

Fig. 1. De reciproke waarde van de massa-energieabsorptiecoëfficiënt μ/ϱ van lucht voor monochromatische röntgenstraling als functie van de stralenkwaliteit. Deze is zowel uitgedrukt in de halveringsdikte $d_{\frac{1}{2}}$ als in de quantumenergie (in keV). Voor harde straling (zoals gebruikt wordt bij therapie) is μ/ϱ nagenoeg constant; voor zachte straling (diagnostiek) geenszins.

Zoals bekend, is de straling die een röntgenbuis uitzendt *niet* monochromatisch; ter karakterisering ervan kan men dus niet één enkele quantumenergie opgeven. In de praktijk kenmerkt men de spectrale intensiteitsverdeling — kortweg de kwaliteit genoemd — door de dikten die men een filter van aluminium of van koper moet geven om de doseringssnelheid (röntgen per tijdseenheid dus) te verminderen tot de helft, een kwart, een achtste enz. van de oorspronkelijke waarde. Men noemt deze dikten resp. de eerste, tweede, derde enz. halveringsdikte (H.V.D.). In de medische praktijk volstaat men meestal met het bepalen van de eerste halveringsdikte.

Heeft men te doen met monochromatische straling, dan neemt de intensiteit eenvoudig exponentieel af met de in een absorberend medium doorlopen weg, en is de kwaliteit van de straling door de 1e H.V.D. volledig bepaald. Het filter waar-

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

mee men de intensiteit reduceert van $\frac{1}{2}$ tot $\frac{1}{4}$, is dan even dik als het eerste, enz. Voor niet-monochromatische straling zijn de opvolgende filters steeds dikker, omdat de zachte componenten het sterkste geabsorbeerd worden en de overblijvende straling dus steeds harder wordt. Het dikteverschil is des te groter naarmate het spectrum van de straling breder is. Het quotiënt 1e H.V.D./2e H.V.D. noemt men de homogeniteitsgraad; voor monochromatische straling is die dus één.

In fig. 1 is, zoals men gezien heeft, langs de abscis de stralenkwaliteit van de monochromatische röntgenstraling behalve in de quantumenergie ook uitgedrukt in de halveringsdikte. Globaal geldt ieder punt van de kromme ook voor niet-monochromatische straling van de desbetreffende halveringsdikte.

Ten einde nader te komen tot ons doel, het aangeven van de specifieke moeilijkheden die optreden als men integrale doses wil meten bij gebruik van zachte straling, gaan we thans na hoe de energiestroom door één cm² van een vlak dat men zich loodrecht op de as van de röntgenbundel denkt — de zg. energiestroomdichtheid —, samenhangt met de ter plaatse in dit vlak (per tijdseenheid) optredende luchtionisatie. We merken daartoe op dat de ionisatie evenredig is met de *geabsorbeerde* energie; het bovengenoemde bedrag van 34 eV per gevormd ionenpaar geldt voor alle in aanmerking komende stralenkwaliteiten. Daar — in een klein volume — de per tijdseenheid geabsorbeerde hoeveelheid energie gelijk is aan het produkt van de energiestroomdichtheid en de absorptiecoëfficiënt μ, kan men concluderen dat de verhouding tussen de in röntgen per tijdseenheid uitgedrukte doseringssnelheid en de energiestroomdichtheid de factor μ bevat. Het verloop hiervan met de stralenkwaliteit is uiteraard hetzelfe als dat van μ/ϱ. Zoals we zojuist in fig. 1 zagen, is deze factor voor harde stralen (therapie) nagenoeg onafhankelijk van de stralenkwaliteit, maar voor zachte straling (diagnostiek) in genen dele. Het is dus begrijpelijk dat men in de diagnostiek de geabsorbeerde energie niet eenvoudig kan afleiden uit een in röntgen uitgedrukte bestralingsdosis. Men zou daartoe de spectrale intensiteitsverdeling van de röntgenstraling nauwkeurig moeten kennen.

Met de in dit artikel nog te beschrijven dosismeter voor de diagnostiek, kan men de totale op de patiënt vallende energie(stroom) nauwkeurig meten zonder dat de kwaliteit van de straling precies bekend behoeft te zijn. Daar men in de diagnostiek bij het meten van de integrale geabsorbeerde dosis geen grote precisie behoeft na te streven — een onzekerheid van 25% is toelaatbaar [1]) — , kan men deze dosis met voldoende nauwkeurigheid bepalen door te veronderstellen dat van de opvallende energie enkele tientallen procenten wordt doorgelaten of verstrooid en de rest wordt geabsorbeerd [4]).

Uiteraard bepaalt men op deze wijze niet de gonadendosis. Kent men echter de totale door het lichaam geabsorbeerde energie en de plaats waar de straling werd toegediend (longen, maag, enz.), dan kan men daaruit een schatting van de gonadendosis maken. Het meten van de integrale geabsorbeerde dosis — de gonadendosis zelf meten is zeer bezwaarlijk — is dus alleszins zinvol [5]).

De wijze waarop onafhankelijkheid van de stralenkwaliteit in de nieuwe dosismeter voor de diagnostiek verkregen is, zal aan het slot worden beschreven. We bespreken nu eerst een aantal instrumenten voor dosismeting bij de therapie [6]).

Dosismeters voor de therapie

Ionisatiekamers

Een schematische voorstelling van een ionisatiekamer voor röntgendosimetrie vindt men in *fig. 2*. Behalve de cilinderwand *1* en de centrale pen *2*, die beide geleidend zijn en dienst doen als de twee

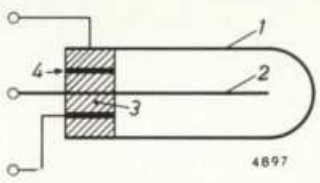

Fig. 2. Ionisatiekamer voor dosismeting bij therapeutische bestralingen (schematisch). *1* wand. *2* centrale pen. *3* isolatie. *4* schutring (lekelektrode).

in de inleiding genoemde elektrodes, is er, aangebracht in de isolerende schijf *3*, nog een derde, ringvormige elektrode *4*. Deze krijgt nagenoeg dezelfde potentiaal als de pen en dient ervoor om te voorkomen dat men een eventueel over de isolatie lopende lekstroom meemeet. Het volume van de kamer wordt bij de ijking zo ingesteld — we zullen aanstonds zien hoe — dat de gevoeligheid van de kamer (coulomb/röntgen) een voor de praktijk handige waarde krijgt. We bedoelen hiermee dat de gevoeligheid van de kamer zodanig moet passen bij die van de meetschakeling, dat de volle uitslag van het in

[4]) Voor enkele methodes van longonderzoek is de geabsorbeerde fractie reeds nauwkeurig bekend. Zie: E. Zieler, Voordracht op het 41e Duitse röntgenologencongres te Freudenstadt, mei 1960.

[5]) Zie hoofdstuk IV (door J. Feddema en W. J. Oosterkamp) van het boek „Modern trends in diagnostic radiology" (2nd series), Butterworth, Londen 1953.

[6]) Een diepgaande behandeling van allerlei methodes voor de meting van röntgendoses in de therapie en de fysische achtergrond daarvan vindt men in G. J. Hine en G. L. Brownell, Radiation dosimetry, Acad. Press, New York 1956.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

deze schakeling opgenomen meetinstrument overeenkomt met een rond aantal (b.v. 3 of 10) röntgen.

De stroom I die er bij bestraling in een bepaalde ionisatiekamer gaat vloeien, en de lading Q van de per tijdseenheid gevormde ionen, zijn voor niet te grote waarden van Q onderling evenredig. Overschrijdt Q een zekere kritische waarde, dan neemt I echter minder sterk toe dan men zou verwachten. Dit effect treedt bij des te kleinere Q-waarden op naarmate het potentiaalverschil V tussen de elektrodes *1* en *2* kleiner is (*fig. 3*). De oorzaak ervan is gelegen in het feit dat de ionen een zekere kans hebben om te recombineren en dus hun lading te verliezen. We zullen dit nader toelichten aan de hand van *fig. 4*.

In deze figuur vindt men weergegeven het verband tussen I en V voor drie verschillende waarden van Q. Men ziet dat bij kleine V de stroom met de spanning toeneemt (gebied A), vervolgens nagenoeg constant wordt (gebied B) en ten slotte met toenemende V opnieuw gaat stijgen (gebied C). Dit wordt verklaard doordat bij relatief lage spanningen de looptijd van de ionen zo groot is dat een aanmerkelijk deel ervan recombineert alvorens een der elektrodes bereikt te hebben (gebied A). Verhoogt men de spanning, dan wordt de looptijd kleiner en wordt de kans op recombinatie dus óók geringer, zodat de stroom zal toenemen en ten slotte nagenoeg onafhankelijk wordt van de aangelegde spanning (gebied B). Verhoogt men V echter zó veel dat de elektronen in het elektrische veld in de kamer voldoende energie kunnen opnemen om de moleculen (atomen) te ioniseren, dan leveren ook de nieuwgevormde ionen een bijdrage tot de stroom en neemt deze weer toe met V (gebied C). Dit is de zg. gasversterking, waarop de werking van de proportionele telbuis berust.

Zoals men ziet, valt de grens tussen gebied B en gebied C voor alle drie de doseringssnelheden bij dezelfde waarde van V. Met de grens tussen A en B is dit niet het geval. Het recombinatie-effect blijft bij toenemende V het langst merkbaar bij grote Q, d.w.z. bij een grote doseringssnelheid; men heeft dan een grotere ionen- en elektronenconcentratie en dus per ion een grotere recombinatiekans.

Uit het bovenstaande kan men direct afleiden waarom de I-Q-krommen van fig. 3 bij hoge Q-waarden ombuigen. Door Q, bij constante V, te laten toenemen, passeert men immers (fig. 4) op zeker ogenblik de grens tussen gebied B en gebied A. Dit zal verder minder snel gebeuren naarmate men V hoger kiest (binnen gebied B uiteraard).

Behalve de tussen de elektrodes aangelegde spanning, is bij een ionisatiekamer van het in fig. 2 geschetste type ook de wand een factor van belang. Dit is de reden dat we in het bovenstaande de stroom I vergeleken hebben met de per tijdseenheid in de kamer gevormde lading Q en niet met de doseringssnelheid q. Ter verklaring hiervan herinneren we

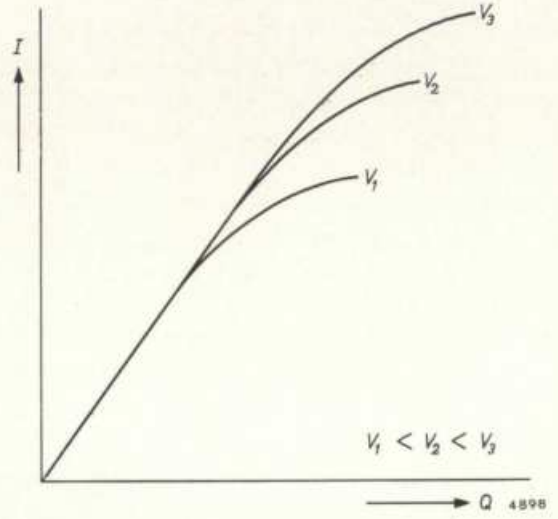

Fig. 3. Verband tussen de stroom I die in een bestraalde ionisatiekamer gaat vloeien, en de in de kamer per tijdseenheid door ionisatie gevormde lading Q, voor verschillende waarden van de aangelegde spanning V.

aan de opmerking die we maakten bij de definitie van de röntgen (blz. 48) naar aanleiding van het feit dat daar sprake was van de ionisatie veroorzaakt door de in 0,001293 g lucht gevormde secundaire elektronen. Doordat de kinetische energie van deze elektronen groot is — de snelste nemen immers nagenoeg de totale energie van het (primaire) röntgenquantum over —, dringt een aantal van de in de wand vrijgemaakte secundaire elek-

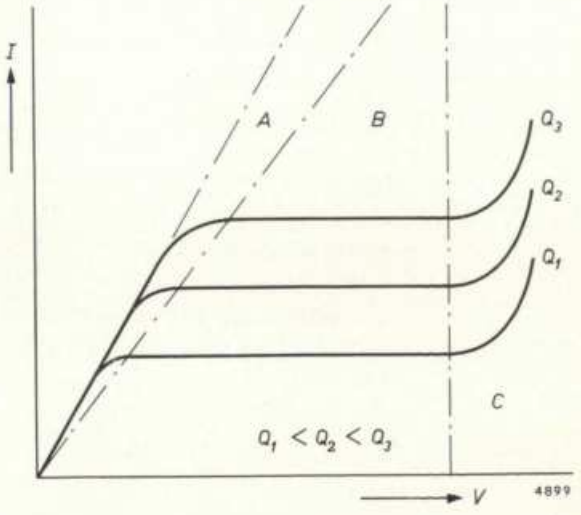

Fig. 4. Verband tussen de stroom I en de aangelegde spanning V voor verschillende waarden van de per tijdseenheid in de kamer gevormde lading Q. Het werkpunt moet in gebied B liggen.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

tronen door tot in de holte van de kamer en levert daar een bijdrage tot de ionisatie van de lucht. Anderzijds loopt ook een deel van de in de lucht gevormde elektronen door tot in de wand en draagt tot de ionisatie van de lucht minder bij dan anders het geval geweest zou zijn. In het algemeen compenseren deze twee effecten elkaar niet volledig. Dit zou op zichzelf geen moeilijkheden opleveren — men moet de kamer tòch ijken —, ware het niet dat de relatieve bijdrage van het resulterende effect afhangt van de stralenkwaliteit. Bij constante spanning V en constante doseringssnelheid (zoals die in vrije lucht zou optreden) hangt de stroom I van een ionisatiekamer dus in het algemeen af van de stralenkwaliteit.

Anderzijds heeft de wand óók invloed op de stroom doordat een deel van de straling erin geabsorbeerd wordt, en de intensiteit van de straling in de holte van de kamer dus kleiner is dan ze bij afwezigheid van de kamer ter plaatse zou zijn. Ook dit effect hangt af van de stralenkwaliteit. Door nu het wandmateriaal geschikt te kiezen, kan men bereiken dat de beide wandeffecten elkaar in een bepaald gebied van stralenkwaliteiten grotendeels compenseren [7]). Op deze wijze is het mogelijk een kamer te construeren die in een beperkt gebied van stralenkwaliteiten een redelijk constante gevoeligheid vertoont. Dit is voor de praktijk voldoende. Wel heeft men dus om het gehele gebied van therapeutisch toegepaste stralenkwaliteiten te kunnen bestrijken, méér dan één ionisatiekamer nodig. *Fig. 5* toont drie van de ionisatiekamers die deel uitmaken van de Philips Universele Dosismeter en die ieder geschikt zijn voor één bepaald gebied van stralenkwaliteiten. De constructie ervan vindt men weergegeven in *fig. 6*. *Fig. 7* ten slotte toont een ionisatiekamer die is aangebracht in het uiteinde van een 70 cm lange slang en die in een lichaamsholte — b.v. de slokdarm — kan worden gebracht.

Fig. 5. Drie van de ionisatiekamers die deel uitmaken van de Philips Universele Dosismeter. De linkerkamer is geschikt voor doseringssnelheden tot 300 röntgen/seconde van straling met een halveringsdikte (Engels: Half-Value Layer, H.V.L.) van 0,02 tot 1,5 mm Al. Voor de middelste zijn deze bedragen 1000 röntgen/min en 0,4 tot 7 mm Al, en voor de rechter 300 röntgen/min en 0,03 tot 4 mm Cu. De holte bevindt zich aan het boveneinde (vgl. fig. 6).

[7]) Zie hiervoor b.v. W. J. Oosterkamp en J. Proper, Acta Radiol. **37**, 33, 1952.

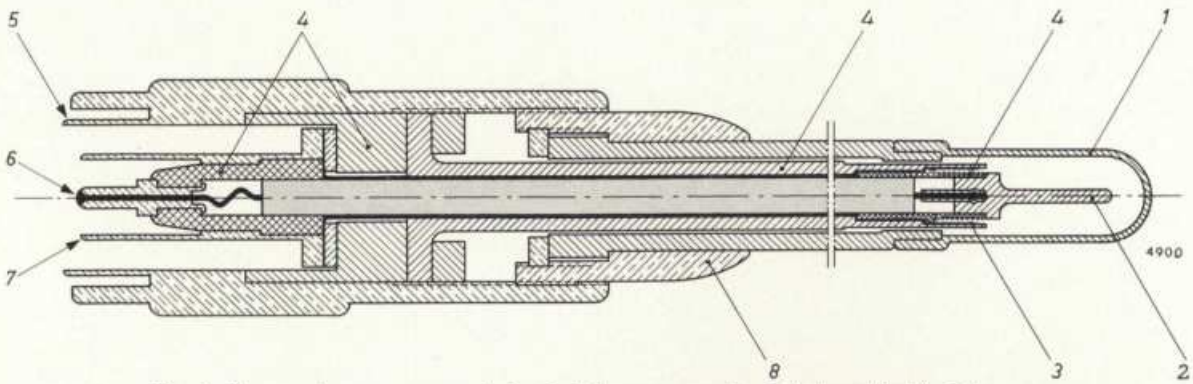

Fig. 6. Doorsnede van een van de ionisatiekamers van fig. 5 (schematisch). *1* kamerwand. *2* centrale elektrode. *3* (de dikke zwarte lijn) schutring. *4* isolatie. *5*, *6* en *7* contacten voor kabelaansluiting respectievelijk verbonden met de elektrodes *1*, *2* en *3*. Door het deel *8*, waaraan de kamerwand *1* is vastgemaakt, meer of minder ver in te schroeven, kan men het volume van de kamer zodanig instellen dat de gevoeligheid juist de gewenste waarde heeft.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

De vergroting van de ionisatie door de in de wand vrijgemaakte secundaire elektronen en de vermindering ervan doordat een aantal secundaire elektronen doorloopt tot in de wand, compenseren elkaar indien het wandmateriaal en het vulgas dezelfde chemische samenstelling hebben. Het verschil in dichtheid speelt geen rol. Zijn wand en vulgas qua chemische samenstelling niet identiek, dan moeten ze dezelfde massa-absorptiecoëfficiënt hebben voor röntgenstraling en hetzelfde remvermogen (atomic stopping power) voor elektronen. In dit geval spreekt men van een wand die equivalent is met het vulgas. Een wand die voor alle stralenkwaliteiten equivalent is met lucht, is niet te realiseren. Zoals boven bleek, is de wand van de ionisatiekamer van de Philips Universele Dosismeter voor geen enkele stralenkwaliteit volkomen equivalent met lucht, ten einde de absorptie van de röntgenstraling in de wand ongeveer te kunnen compenseren.

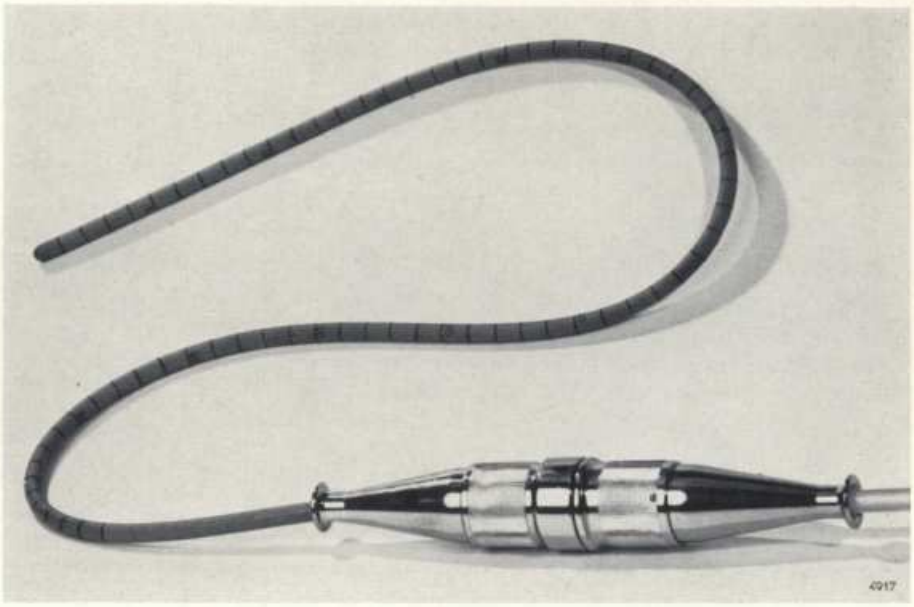

Fig. 7. Voor metingen in een lichaamsholte, b.v. de slokdarm, is een kleine ionisatiekamer aangebracht in het eind van een 70 cm lange slang.

Een goede indruk van de mate waarin de ionisatiestroom, bij gegeven doseringssnelheid, onafhankelijk is van de stralenkwaliteit, geeft de kromme van *fig. 8*. Dit is de correctiekromme die geldt voor de aanwijzing van de zojuist genoemde Philips dosismeter indien daarop de rechtse van de in fig. 5 getoonde ionisatiekamers — een kamer voor gebruik bij dieptetherapie — is aangesloten. Men ziet dat de responsie voor stralenkwaliteiten tussen 0,2 en 1,5 mm Cu (dat is resp. ongeveer 5 en 20 mm Al; vgl. fig. 1) minder dan 1% varieert. Afwijkingen van 3% vindt men pas bij 0,1 en 2,5 mm Cu.

Voor het ijken van de ionisatiekamers die deel uitmaken van de Philips Universele Dosismeter — dit geschiedt met alle exemplaren die de fabriek verlaten —, wordt gebruik gemaakt van een uiterst stabiele apparatuur die als substandaard beschouwd mag worden. De ijkkromme van deze substandaard is verkregen door vergelijking met de standaard-ionisatiekamers [8]) die zich bevinden in het National Physical Laboratory te Teddington (Engeland), de Physikalisch-technische Bundesanstalt te Brunswijk (Duitsland) en het Rotterdams Radiotherapeutisch Instituut te Rotterdam [9]).

De ijkkromme is zodanig geconstrueerd dat de gevoeligheid van de Philips standaard gelijk is aan het gemiddelde van de

[8]) Een standaard-ionisatiekamer is zo geconstrueerd dat de wand geen enkele rol kan spelen. Men vindt het principe ervan o.m. beschreven in het in noot [6]) aangehaalde boek van Hine en Brownell.

[9]) In 1957 uitgevoerd door W. J. Oosterkamp en J. Proper van het Philipslaboratorium te Eindhoven.

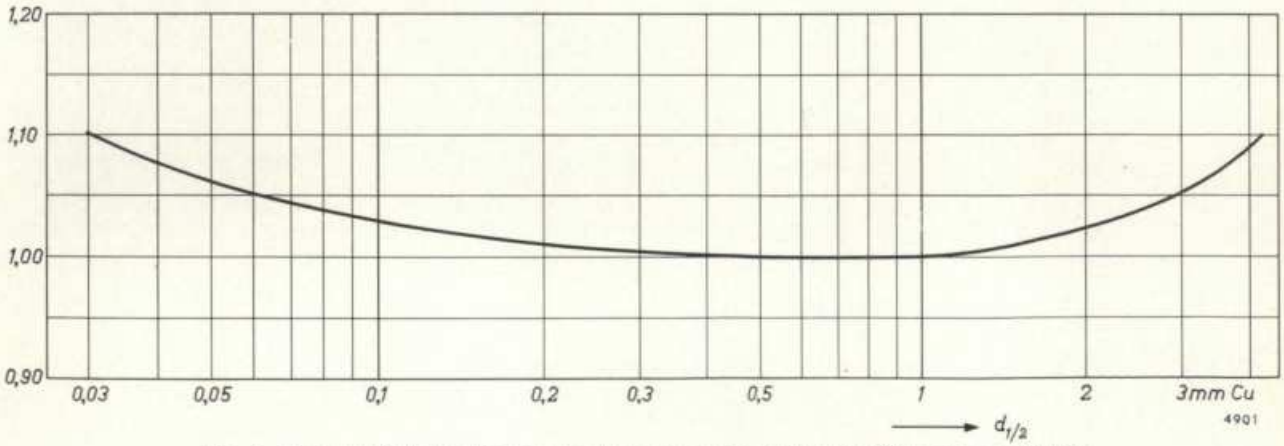

Fig. 8. De correctiefactor die men moet toepassen om uit de aanwijzing van de Philips Universele Dosismeter de werkelijk opgetreden bestralingsdosis te vinden, wijkt voor iedere ionisatiekamer in een flink gebied van stralenkwaliteiten slechts weinig van 1 af. De hier getekende kromme geldt voor de rechtse ionisatiekamer van fig. 5.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

gevoeligheden van de standaardkamers van de drie genoemde instituten en die van het National Bureau of Standards te Washington (U.S.A.). De gevoeligheid van de standaardkamer van dit instituut was bekend via die van het National Physical Laboratory. Bij de stralenkwaliteiten — voor ieder geval een andere — waar de onderlinge verschillen in gevoeligheid het grootst zijn, hebben die verschillen de volgende waarden:

Nat. Phys. Lab.	0,9% groter
Nat. Bur. Stand.	0,5% groter
Rott. Radiother. Inst.	0,3% groter
Phys.-techn. Bundesanst.	1,4% kleiner

Alleen die ionisatiekamers worden bij de genoemde ijking goedgekeurd, waarvan de gevoeligheid bij geen enkele stralenkwaliteit meer dan 3% afwijkt van de waarde die uit de meegeleverde kromme (vgl. fig. 8) volgt.

Condensatorkamers

Zoals we hebben gezien, is een condensatorkamer niets anders dan een geladen, met lucht gevulde, condensator die gedurende de bestraling gedeeltelijk ontladen wordt. Daar zo'n kamer gedurende de bestraling niet met de meetschakeling verbonden is, heeft hij geen schutring. Dit betekent dat men bijzondere aandacht moet besteden aan de isolatie. Zo is het b.v. noodzakelijk om te zorgen dat het oppervlak van de isolator steeds goed droog blijft.

Uit hetgeen hierboven is medegedeeld over de invloed van de recombinatie der ionen op het meetresultaat, kan men concluderen dat alle waarden die het potentiaalverschil V van de elektrodes tijdens een meting aanneemt, in het gebied moeten vallen waarbinnen de recombinatie niet in hinderlijke mate merkbaar is — het gebied B van fig. 4. Een condensatorkamer mag dus niet te ver ontladen worden.

Kamers van dit type worden bij therapeutische bestralingen gebruikt om, evenals met de kamer van fig. 7 het geval is, te kunnen meten in lichaamsholten. Men gebruikt dan zeer kleine exemplaren. Verder bieden ze, zoals we reeds hebben meegedeeld, de mogelijkheid om op een groot aantal plaatsen tegelijk te meten zonder ook evenzoveel meetschakelingen te hoeven gebruiken.

Behalve voor therapeutische doeleinden gebruikt men condensatorkamers ook ten dienste van de bescherming tegen straling. Ze worden dan b.v. in de zak gedragen door de personen die bij hun werk kans lopen een te grote hoeveelheid straling te ontvangen. Men kan op die manier controleren of de genomen beschermingsmaatregelen doeltreffend zijn. Ter wille van de gemakkelijke draagbaarheid geeft men deze kamers meestal ongeveer de vorm en de afmetingen van een vulpen. Grote condensatorkamers, die uiteraard zeer gevoelig zijn, gebruikt men om snel het stralingsniveau in een werkruimte te meten en ook voor het detecteren en meten van lekstraling. In *fig. 9* vindt men enige condensatorkamers afgebeeld. De rechter kamer (zie ook *fig. 10*) is voorzien van een zeer dun venster (1 mg/cm^2) en daardoor geschikt voor meting van zeer zachte röntgenstraling en van β-straling.

De meetschakeling van de Philips Universele Dosismeter

Zoals uit het voorgaande bleek, is de functie van de bij een ionisatiekamer behorende meetschakeling het op de juiste potentiaal brengen van de elektrodes — inclusief de schutring — en het omzetten van de ionisatiestroom (resp. -lading) in een afleesbare aanwijzing. Als voorbeeld van een dergelijke schakeling behandelen we die welke is toegepast in de Philips Universele Dosismeter. Een schema ervan, gedeeltelijk in blokvorm, vindt men

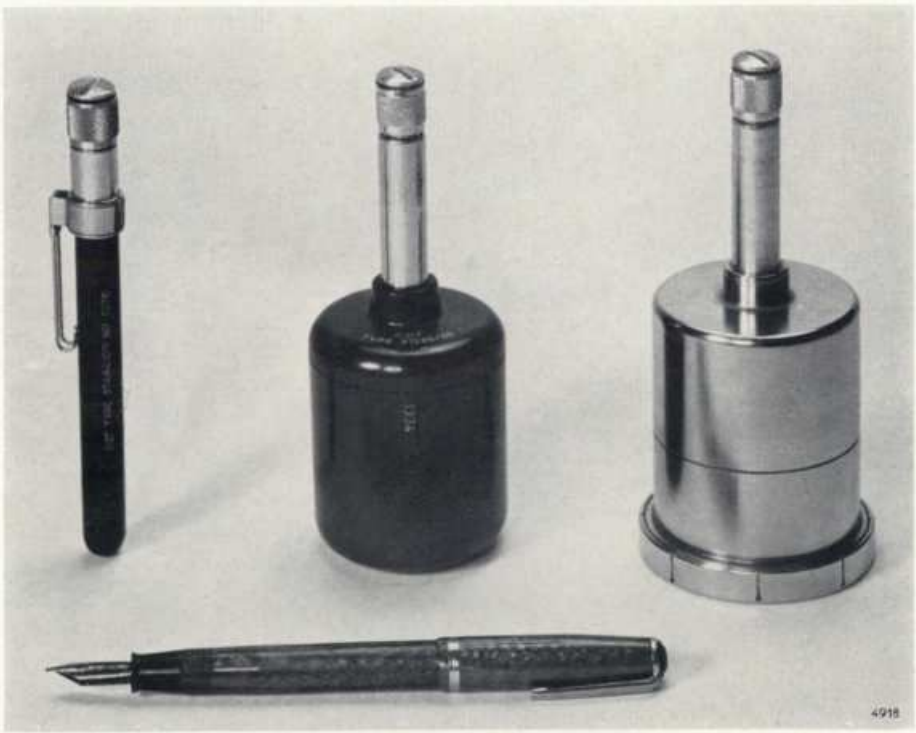

Fig. 9. Drie condensatorkamers ten dienste van de bescherming tegen straling. De kleinste kan men in de zak dragen, net als een vulpen; met de middelste, die door zijn grote afmetingen zeer gevoelig is, kan men o.a. snel het stralingsniveau in een werkruimte meten.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

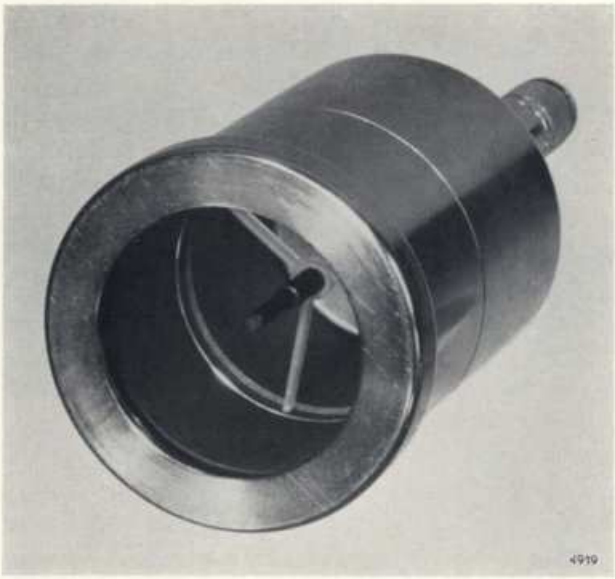

Fig. 10. De condensatorkamer voor zeer zachte straling met afgenomen beschermingsdeksel. Door het venster heen kan men de centrale elektrode zien.

afgebeeld in *fig. 11*. Wil men een doseringssnelheid meten, dan wordt de schakelaar S in stand *1* gezet en vloeit de ionisatiestroom door de weerstand R. Het potentiaalverschil dat dan optreedt tussen de uiteinden p en q van deze weerstand, wordt gemeten met de rechts van de streeplijn getekende elektronische schakeling. Hierin is I een elektronische voltmeter. Daar de stroom die deze aan de ingangsschakeling onttrekt, klein moet zijn ten opzichte van de ionisatiestroom — die zelf slechts van de orde van grootte van 10^{-10} A is —, moet de schakeling I een zeer grote ingangsweerstand hebben. Dit is gerealiseerd door hiervoor een elektrometerschakeling met trilcondensator te kiezen [10]).

Het uitgangssignaal van I — een wisselspanning waarvan de amplitude evenredig is met de ingangsspanning en waarvan de frequentie gelijk is aan die van de trillende condensator — wordt versterkt door de versterker II, vervolgens gelijkgericht door de schakeling III en toegevoerd aan het draaispoelinstrument M.

Ten einde de gevoeligheid van de gehele apparatuur te stabiliseren, is in de schakeling een tegenkoppeling aangebracht: een instelbaar deel van het uitgangssignaal van III wordt door de schakeling IV in tegenfaze weer toegevoerd aan I. Men kan hiermee tevens de gevoeligheid variëren. Dit is om twee redenen gewenst. In de eerste plaats kan men op deze wijze gemakkelijk overschakelen op een ander meetgebied, en in de tweede plaats behoeft men de aanwijzing van het instrument niet te corrigeren indien de temperatuur en de druk van de lucht afwijken van de waarden waarvoor de kamer geijkt is. Men brengt deze correctie nu nl. van te voren aan door de gevoeligheid van de meetschakeling dienovereenkomstig te wijzigen.

Omtrent de gelijkrichtschakeling III merken we nog op dat deze ten eerste fazegevoelig en ten tweede selectief is: signalen met een frequentie die afwijkt van die van de trilcondensator worden, afgezien van de oneven harmonischen, niet doorgelaten. Hiertoe wordt het uitgangssignaal van de oscillator V dat de trilcondensator van I aandrijft, óók als hulpsignaal aan III toegevoerd. Door de schakeling fazegevoelig te maken, voorkomt men dat de tegenkoppeling overgaat in een meekoppeling wanneer het

[10]) Zie hiervoor: J. van Hengel en W. J. Oosterkamp, Een dynamische elektrometer met directe aanwijzing, Philips techn. T. **10**, 338-346, 1948. De schakeling van de Philips Universele Dosismeter, die goeddeels is ontwikkeld door J. Fransen, wijkt op enkele punten van de daar beschreven schakeling af, maar is er in principe aan gelijk.

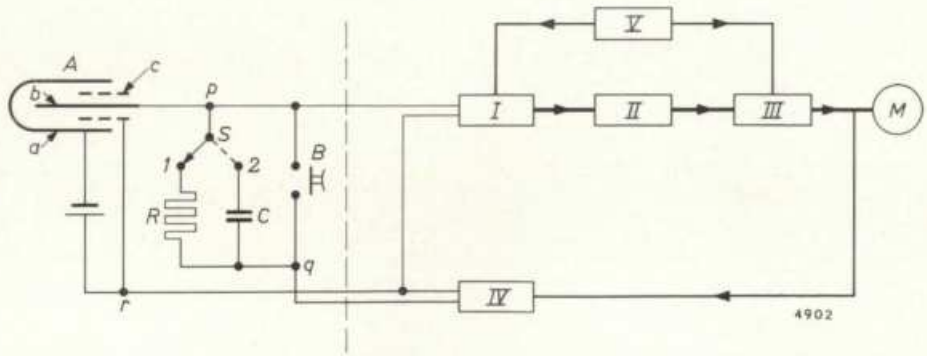

Fig. 11. Meetschakeling, ten dele in blokvorm, van de Philips Universele Dosismeter. Indien de ionisatiekamer A (a is de wand, b de pen en c de schutring) bestraald wordt, vloeit de ionisatiestroom, als S in de stand *1* staat, door de weerstand R. Er ontstaat dan tussen de punten p en q een met de stroom evenredig potentiaalverschil, dat een maat is voor de doseringssnelheid. Het wordt stroomloos gemeten met de elektrometerschakeling I, die werkt met een trilcondensator. II versterker. III fazegevoelige gelijkrichter die alleen signalen doorlaat die de frequentie van de trilcondensator hebben (en de oneven harmonischen daarvan). M wijzerinstrument. Met IV kan men een instelbaar deel van het uitgangssignaal in tegenfaze naar I terugvoeren. Door de aanwezigheid van deze tegenkoppeling is de versterking gestabiliseerd tegen netspanningsfluctuaties enz. en kan men de gevoeligheid gemakkelijk variëren. V oscillator die de trilcondensator van I aandrijft en een hulpsignaal van gelijke frequentie aan III toevoert.

Staat de schakelaar S in stand *2*, dan integreert men de ionisatiestroom en wordt dus de dosis gemeten. De condensator C kan na een dergelijke meting weer ontladen worden met de drukknop B. Voor het meten aan een condensatorkamer sluit men deze aan op de punten p en r. S staat dan in een derde stand, die overeenkomt met stand *2*, maar waarin C een veel kleinere waarde heeft.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

ingangssignaal zeer snel in sterkte afneemt. Het kan nl. in dat geval gebeuren dat het door *IV* geleverde signaal, dat de verandering slechts vrij langzaam volgt, een grotere amplitude heeft dan het ingangssignaal zelf. Dank zij het feit dat de schakeling verder signalen met afwijkende frequentie nagenoeg niet doorlaat, kunnen eventueel aanwezige stoorsignalen de uitslag van de meter niet beïnvloeden.

Voor een uitvoeriger beschrijving van de werking en de schakeling van de blokken *I*, *III* en *IV* moge worden verwezen naar het aangehaalde artikel [10]).

Wenst men niet de doseringssnelheid te meten, maar de dosis, dan moet men de schakelaar *S* in stand *2* zetten. Men meet dan na afloop van de bestraling de spanning — omgerekend in röntgen — waartoe de ionisatiestroom de condensator *C* heeft geladen.

Om de meetschakeling te kunnen controleren, is in de Philips Universele Dosismeter nog een ijkstroombron aangebracht. Deze stroombron is een van de buitenlucht afgesloten ionisatiekamer die gevuld is met stikstof en die op dezelfde wijze op de meetschakeling wordt aangesloten als de ionisatiekamer die men bij een meting gebruikt. Op de middenpen ervan is een kleine hoeveelheid radium aangebracht. De straling hiervan veroorzaakt in de stikstof een zodanige ionisatie dat er in de weerstand *R* (fig. 11) een stroom van ca. 4×10^{-10} A gaat lopen.

Voor het corrigeren van de gevoeligheid voor afwijkende waarden van de temperatuur en de luchtdruk, kan men op de meetschakeling een ionisatiekamer aansluiten die in open verbinding staat met de buitenlucht en waarin op de middenpen een met radium gevuld glazen bolletje is aangebracht (*fig. 12*). De α-straling die het radium uitzendt, wordt geabsorbeerd in de wand van het bolletje; de β- en γ-straling veroorzaken de ionisatie.

Beschikt men over een goede barometer en een thermometer, dan kan men de correctie ook ontlenen aan een tabel.

Een afbeelding van de Philips Universele Dosismeter vindt men in *fig. 13*.

Fig. 12. In open verbinding met de lucht staande ionisatiekamer met inwendige stralingsbron voor het corrigeren van de gevoeligheid van de meetschakeling (fig. 11 en 13) voor afwijkende waarden van temperatuur en luchtdruk.

Een dosismeter voor de diagnostiek

Zoals hierboven reeds werd uiteengezet, meet men met de nu te bespreken dosismeter voor de diagnostiek de totale op de patiënt vallende energie-(stroom). De detector heeft daartoe de vorm gekregen van een grote platte doos, die men voor de patiënt plaatst. De doos is zo groot dat de gehele röntgenbundel er door gaat. De onafhankelijkheid van de stralenkwaliteit is verkregen door niet te werken met één enkele ionisatiekamer, maar met twee, die gescheiden zijn door een filter. Het verschil van de in beide kamers optredende ionisatiestromen is, indien er aan zekere voorwaarden voldaan is, in een flink gebied van stralenkwaliteiten evenredig met de energiestroom die deze zg. tweelingkamer verlaat — en die dus op de patiënt valt [11]). Aan de hand van *fig. 14* zullen we nagaan welke deze voorwaarden zijn.

In deze figuur vormen de elektrodes *1* en *2* samen de eerste ionisatiekamer (*P*) en de elektrodes *3* en *4* de tweede (*S*). Beide kamers zijn op de gebruikelijke wijze voorzien van een schutring (*5* en *6*). De respectieve elektrode-afstanden zijn d_P en d_S. De van het focus *A* komende röntgenbundel (grijze tint) passeert achtereenvolgens de kamer *P*, het filter *B* en de kamer *S*. Zoals men ziet, zijn de elektrodes *2* en *3* van de beide kamers met elkaar verbonden en zijn de spanningen zodanig aangelegd dat ze tegen elkaar in geschakeld zijn. De uitgangsklemmen *p* en *r* van de schakeling zijn verbonden met een, nog nader te bespreken, meetschakeling met tegenkoppeling, juist zoals in fig. 11 de enkelvoudige ionisatiekamer verbonden is met de meetschakeling van de Philips Universele Dosismeter. (De overeenkomstige punten in deze figuur zijn eveneens aangeduid met *p* en *r*.)

[11]) Dit idee is mede afkomstig van K. Bronsema, Hoofdindustriegroep Röntgen- en medische apparaten, Eindhoven.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

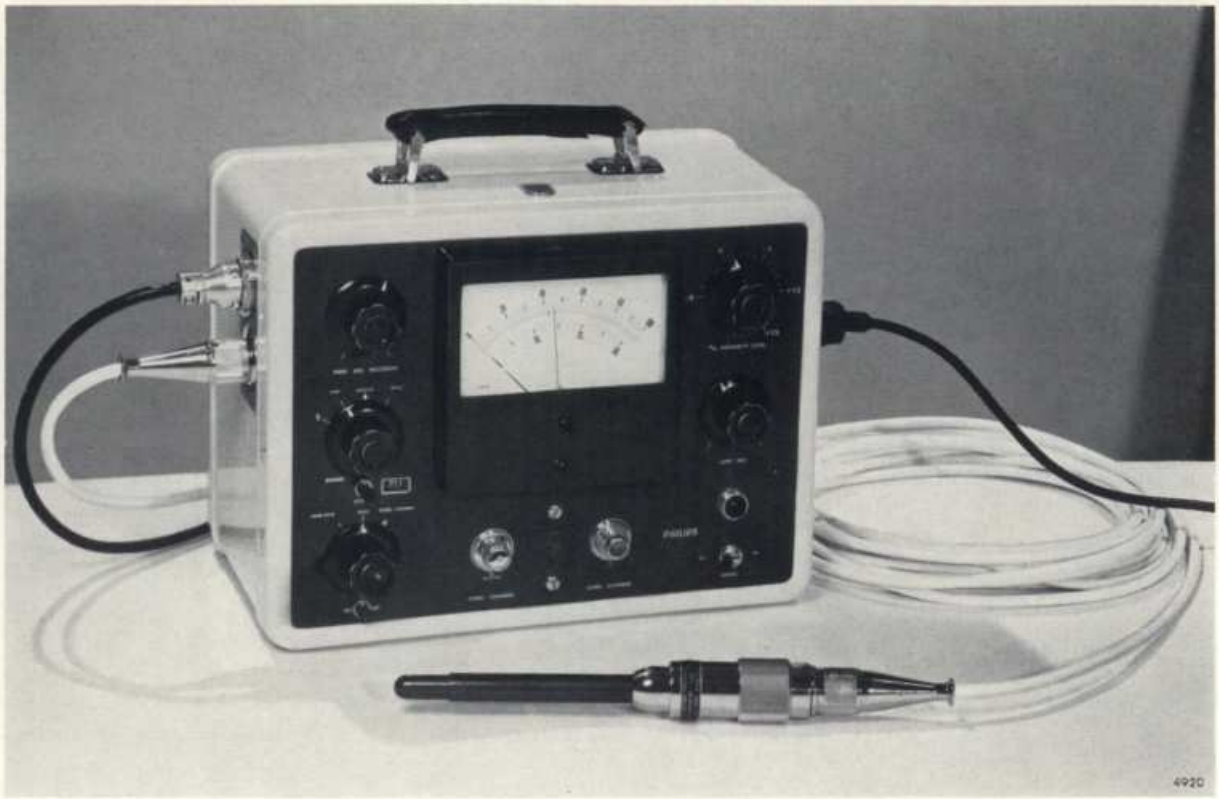

Fig. 13. Voedings- en meetgedeelte van de Philips Universele Dosismeter, met daarop aangesloten een van de bijbehorende ionisatiekamers. Op het frontpaneel ziet men rechts van beneden naar boven: de netschakelaar, een signaallampje, de knop voor instellen van het nulpunt, de knop voor gevoeligheidscorrectie bij afwijkende temperatuur en luchtdruk, links: drukknop *B* en schakelaar *S* van fig. 11, een drukknop voor het inschakelen van de ijkstroombron, de keuzeschakelaar voor de meetgebieden, knop voor nulpuntsinstelling van een eventueel aangesloten schrijver. Op de bussen die men onder de meter ziet, kan men, na wegnemen van de stofkap, een condensatorkamer aansluiten. De rechterbus dient voor het laden, de linker voor het meten van de resterende lading. Het zwarte snoer rechts is de voedingskabel. Op de bovenste bus links kan men desgewenst een schrijver aansluiten.

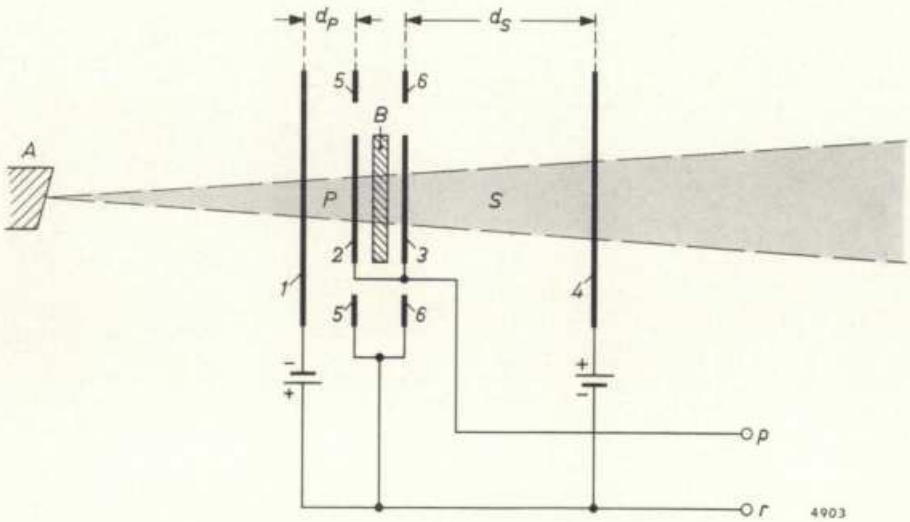

Fig. 14. Tweeling-ionisatiekamer voor het bepalen van integrale doses in de diagnostiek. De van de anode *A* komende röntgenbundel (grijze tint) passeert achtereenvolgens de ionisatiekamer *P* (elektrodes *1* en *2*), het filter *B* en de ionisatiekamer *S* (elektrodes *3* en *4*). De kamers hebben de vorm van een platte doos en zijn zo groot dat de gehele op de patiënt vallende röntgenbundel erdoor gaat. De elektrodes *5* en *6* zijn de respectieve schutringen.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

De per tijdseenheid in kamer P gevormde lading, die bij aanleggen van een geschikte spanning (fig. 4) tussen de elektrodes *1* en *2* gelijk is aan de stroom I_P, hangt van de ter plaatse passerende energiestroom $\dot{E}_P$ af volgens de formule:

$$I_P = e \times \mu \times d_P \times \dot{E}_P / W = C\,\mu\,d_P\,\dot{E}_P. \quad . \quad . \quad (1)$$

Hierin is nog e de elementaire lading, W de energie die vereist wordt voor het creëren van één ionenpaar — in lucht immers 34 eV — en C hun quotiënt. Voor de kamer S geldt geheel analoog:

$$I_S = C\,\mu\,d_S\,\dot{E}_S. \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (2)$$

Het verschil van beide stromen is:

$$I = I_S - I_P = C\,\mu\,(\dot{E}_S\,d_S - \dot{E}_P\,d_P). \quad . \quad (3)$$

Verwaarlozen we de absorptie van de wanden, dan is $\dot{E}_S/\dot{E}_P$ gelijk aan de transmissiefactor α van het filter B. Stelt men verder nog $d_S/d_P = \beta$, dan kan men (3) herleiden tot:

$$I = C\,\mu d_S \dot{E}_S \left(1 - \frac{1}{\alpha\beta}\right). \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (4)$$

In deze vergelijkingen hangen zowel μ als α af van de kwaliteit van de straling; α is groter en μ kleiner naarmate de straling harder is.

Het verband tussen I en $\dot{E}_S$ zal dus onafhankelijk van de stralenkwaliteit zijn als de factor $\mu(1 - 1/\alpha\beta)$ dat is. Daar men β vrij kan kiezen en men ook de grootte en het verloop van α min of meer in de hand heeft, is het mogelijk om voor twee stralenkwaliteiten exact, en voor het daaromheenliggende gebied van stralenkwaliteiten in goede benadering, aan deze eis te voldoen.

Fig. 15 toont in welke mate de responsie van een der aldus geconstrueerde apparaten onafhankelijk is van de stralenkwaliteit. Uitgezet is de verhouding tussen de responsie en de energiestroom die de kamer verlaat, als functie van de anodespanning van de gebruikte röntgenbuis [12]). Men ziet dat bij spanningen van 55 en 130 kV (H.V.D. resp. ca. 2,3 en 6,3 mm Al) de aanwijzing precies goed is en daartussen ten hoogste ca. 15% afwijkt. De voor deze kamer gekozen waarden van de grootheden die het gedrag bepalen, vindt men samengevat in het onderschrift van fig. 15.

De meetpunten waaruit de kromme van fig. 14 is afgeleid, zijn verkregen door metingen volgens twee heel verschillende methodes. Bij de eerste methode [13]) werd gebruik gemaakt van een scintillatiedetector met impulsdichtheidsmeter (count rate meter). Alvorens tot de eigenlijke metingen over te gaan, werd de responsie van deze apparatuur bepaald door de detector te bestralen met monochromatische röntgenstraling — die verkregen was door diffractie in een kristalplaatje — en daarbij ook de afzonderlijke quanta te tellen. Uit de gemeten aantallen quanta en de bekende quantumenergie kon dus direct berekend worden welke energiestroom overeenkwam met een bepaalde uitslag van het meetinstrument. Dit werd gedaan met $K\alpha_1$-straling van wolfraam en van molybdeen.

Behalve de gevoeligheid (uitslag per eenheid van energiestroom) van de scintillatieapparatuur werd voor de monochromatische wolfraam- en molybdeenstraling ook die van de tweelingkamer bepaald. Door de meting vervolgens te herhalen met niet-monochromatische straling, bleek dat het voor de responsie van de tweelingkamer geen verschil maakte of men deze bestraalde met monochromatische straling of met niet-monochromatische, mits de halveringsdikte van beide gelijk was en mits uiteraard ook de energiestroom, blijkens de aanwijzing van de scintillatieapparatuur, gelijk was. Op grond hiervan is aangenomen dat dit voor alle in aanmerking komende quantumenergieën zou gelden en zijn de metingen waaruit de kromme van fig. 14 verkregen is, verricht met deze niet-monochromatische straling.

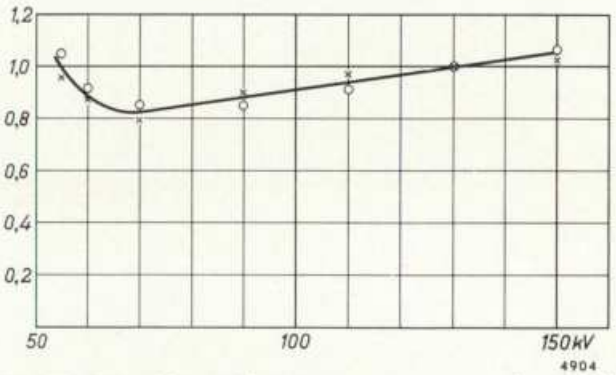

Fig. 15. Correctiefactor die men moet toepassen op de aanwijzing van een diagnostiekdosismeter met tweelingkamer. In een groot gebied van stralenkwaliteiten — hier gekarakteriseerd door de anodespanning van de röntgenbuis in de meetopstelling — wijkt deze factor slechts weinig af van één. (Bij de anodespanningen 50, 130 en 150 kV waren de halveringsdikten 2,3 resp. 5,6 resp. 6,3 mm Al.) De punten × zijn verkregen met een scintillatiedetector, de punten ○ zijn berekend uit de met een ionisatiekamer gemeten bestralingsdosis en de desbetreffende waarde van μ. (Het proefinstrument was uitgerust met een aluminiumfilter van 1½ mm dik. Bij 50 kV is de transmissiefactor α hiervan 0,50, bij 130 kV is hij 0,74. De elektrodenafstanden waren: $d_P = 2{,}0$ mm en $d_S = 4{,}5$ mm.)

[12]) Zie K. Reinsma, Dosismeters voor de röntgendiagnostiek, Uitg. Centrex, Eindhoven 1960, alwaar men ook verdere bijzonderheden vindt.

[13]) Ontwikkeld in samenwerking met C. Albrecht van het Natuurkundig Laboratorium en A. F. J. van Himbergen van de Hoofdindustriegroep Röntgen- en medische apparaten, Eindhoven.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Behalve met de genoemde scintillatieapparatuur is ook een dergelijke meting verricht met een ionisatiekamer. Hierbij werd de energiestroom bepaald, vgl. formule (1), uit de gemeten doseringssnelheid en uit de bij de desbetreffende stralenkwaliteit optredende waarde van μ. Deze waarde werd gevonden door weer de straling te beschouwen als monochromatische straling van dezelfde halveringsdikte [14]). Zoals uit fig. 14 blijkt, lopen de met beide methodes verkregen resultaten niet sterk uiteen.

De bij de tweelingkamer gebruikte meetschakeling lijkt, zoals gezegd, in hoofdlijnen op die van de Philips Universele Dosismeter: ook hier betreft het een elektrometerschakeling met tegenkoppeling. De belangrijkste verschilpunten zijn de volgende. In de eerste plaats wordt hier géén gebruik gemaakt van een schakeling met trilcondensator maar van de elektrometerpentode 4068. Bij de door ons gekozen instelling bedraagt de roosterstroom van deze buis ca. 3×10^{-15} A, hetgeen overeenkomt met slechts $1^0/_{00}$ van de kleinste in de praktijk te meten verschilstroom. In de tweede plaats wordt de stroom hier altijd geïntegreerd. Het instrument wijst dus uitsluitend de totale energie aan die sedert het begin van het onderzoek op de patiënt gevallen is. Voor nadere bijzonderheden verwijzen we naar de in [12]) aangehaalde publikaties.

Te Eindhoven zijn volgens het beschreven principe enige experimentele dosismeters voor de diagnostiek vervaardigd, en in verschillende ziekenhuizen heeft men er reeds ervaring mee opgedaan. Over enige tijd komt een dergelijk instrument ook in de handel.

[14]) Hierbij werd gebruik gemaakt van de gegevens die voorkomen in het in [3]) aangehaalde I.C.R.U.-rapport.

Samenvatting. De laatste jaren is de wenselijkheid gebleken de aan de patiënt toegediende dosis niet alleen te meten bij iedere therapeutische röntgenbestraling, maar ook bij het diagnostisch onderzoek. Bij de therapie leidt men de dosis die het desbetreffende lichaamsdeel ontvangt, af uit een meting van de *bestralingsdosis* (eenheid: röntgen), die direct samenhangt met de ionisatie welke de straling teweegbrengt in lucht. Beschreven worden de ionisatiekamers en de meetschakeling van de Philips Universele Dosismeter die men daartoe gebruiken kan. De bij een diagnostisch onderzoek toegediende dosis is o.a. door de grote variabiliteit der omstandigheden niet op deze wijze te bepalen. Met de beschreven dosismeter voor de diagnostiek meet men de bij het onderzoek in totaal op de patiënt gevallen stralingsenergie. Hieruit kan men met voldoende nauwkeurigheid de door de patiënt geabsorbeerde energie, de zg. *integrale geabsorbeerde dosis* (eenheid: kg rad $= 10^{-2}$ J) afleiden.

EEN SNEEUWAFSCHEIDER VOOR VLOEIBARELUCHTINSTALLATIES

door C. J. M. van der LAAN en K. ROOZENDAAL.

533.24:66.078

De tijd gedurende welke een koudgaskoelmachine continu lucht vloeibaar kan maken, wordt begrensd door het verstopt raken van de afscheider waarin de gasvormige verontreinigingen van de aangevoerde lucht zich als ijs of sneeuw vastzetten. Bij de oude vorm van afscheider moest men deze telkens na een produktie van 120 liter vloeibare lucht, d.w.z. bij continu gebruik na één etmaal, laten ontdooien. Door een nieuwe constructie, geheel afwijkend van alle bekende systemen, is het ontdooien pas nodig na een produktie van 600 liter vloeibare lucht.

Lucht die men vloeibaar wil maken, moet ontdaan worden van verontreinigingen zoals waterdamp en koolzuur. Liet men dit achterwege, dan zou de installatie spoedig door ijs en vast koolzuur verstopt raken.

Waterdamp en koolzuur kan men verwijderen door middel van chemicaliën, b.v. silicagel resp. kaliloog. Deze methode heeft evenwel bezwaren: kaliloog is een bijtende stof, die zeer onaangenaam in het gebruik is; silicagel moet van tijd tot tijd geregenereerd worden, wat de installatie gecompliceerd maakt, en onder tropische omstandigheden moet bovendien de drooginstallatie groot van afmetingen zijn. Door de lucht te comprimeren, zou men wel met een kleinere en goedkopere drooginstallatie kunnen volstaan, maar de hiervoor nodige compressor is een nieuwe complicatie. Hij verbruikt elektrische energie, vergt onderhoud en moet van een speciaal type zijn, waarin de lucht niet door smeermiddelen wordt verontreinigd.

De Philips koudgaskoelmachine [1]) is daarom van meet af aan zo ingericht geweest dat de verontreinigingen, voordat de lucht vloeibaar wordt gemaakt,

[1]) J. W. L. Köhler en C. O. Jonkers, Grondslagen van de koudgaskoelmachine, en Constructie van een koudgaskoelmachine, Philips techn. T. **16**, 33-43 en 61-71, 1954.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

worden uitgevroren. Dit uitvriezen gebeurde vroeger in een ijsafscheider (*fig. 1*), bestaande uit horizontale koperen platen, die door de machine zelf koud werden gehouden. Op deze platen, die voorzien waren van gaten waar de te reinigen lucht doorheen stroomde, zetten waterdamp en koolzuur zich af als ijs of sneeuw.

Deze ijsafscheider had het grote bezwaar dat hij spoedig verstopt raakte, doordat het ijs en de sneeuw zich in hoofdzaak op slechts één of twee van de platen afzetten. Dit is een gevolg van het feit dat met dalende temperatuur het waterdampgehalte van verzadigde lucht zeer snel afneemt (*fig. 2*). Bijna alle waterdamp zal zich dus afzetten op die platen waarvan de temperatuur iets beneden 0 °C is. De volgende, koudere, platen koelen wel de dan reeds droge lucht verder af, maar hun tussenruimten worden niet meer met sneeuw gevuld, behalve bij de laatste, zeer koude, platen, waar koolzuursneeuw wordt afgezet. Ondanks de 14 liter grote inhoud van deze ijsafscheider was ca. 1 kg sneeuw en ijs al voldoende om hem verstopt te doen raken. Als gevolg hiervan is een machine die van deze ijsafscheider is voorzien, niet in staat om zonder onderbreking meer dan 120 liter vloeibare lucht te produceren.

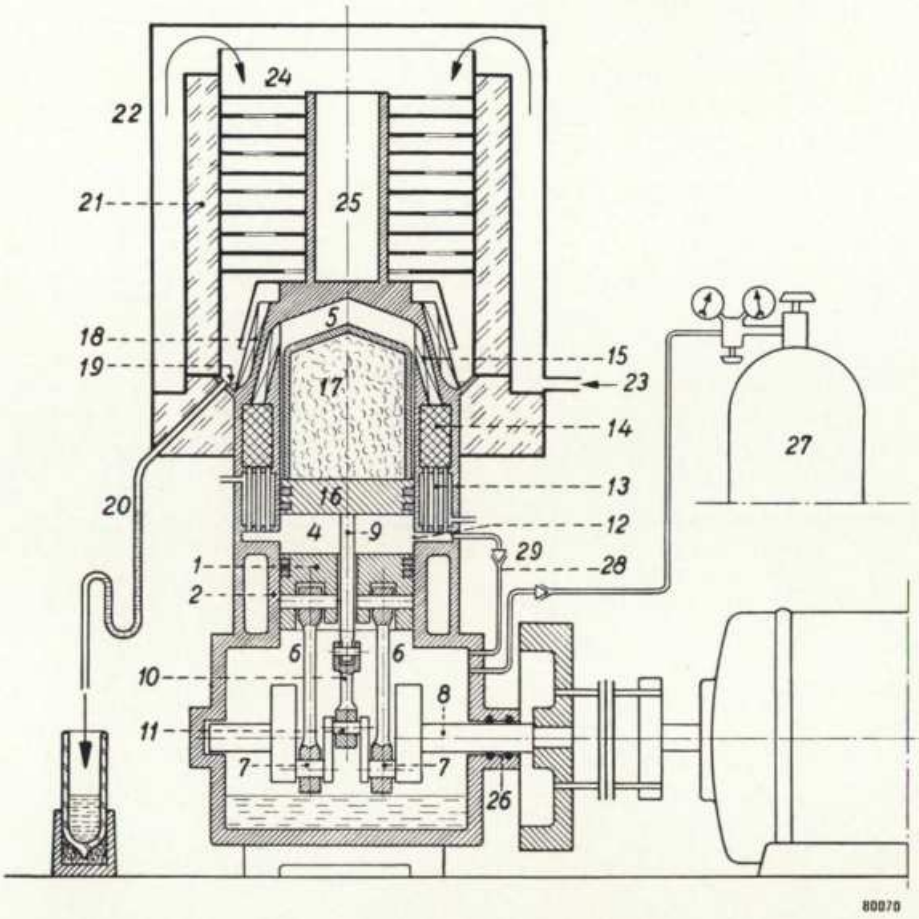

Fig. 1. Vereenvoudigde doorsnede van de koudgaskoelmachine [1]), geconstrueerd voor het vloeibaar maken van lucht. Het gaat hier voornamelijk om de ijsafscheider, die uit de koperen platen *24* bestaat. Deze staan door de buis *25* in contact met de kop („vriezer") *15* van de koelmachine. De lucht treedt onder atmosferische druk binnen bij *23*, wordt bij het stromen langs de platen *24* ontdaan van waterdamp en koolzuur, wordt aan de condensor *18* vloeibaar en vloeit via het ringvormige kanaal *19* en de aftapbuis *20* af. *21* is een isolerend scherm, *22* het omhulsel van de ijsafscheider.

De betekenis van de overige cijfers is: *1* hoofdzuiger, *2* cilinder, *3* verdringer, *4* en *5* ruimten waartussen het gas heen-en-weer stroomt, *6* drijfstangen, *7* krukken, *8* krukas, *9* verdringerstang met drijfstang *10* en kruk *11*, *12* poorten, *13* koeler, *14* regenerator, *16* lichaam en *17* dop van de verdringer, *26* asafdichting, *27* voorraadfles, *28* suppletieleiding, *29* terugslagklep.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

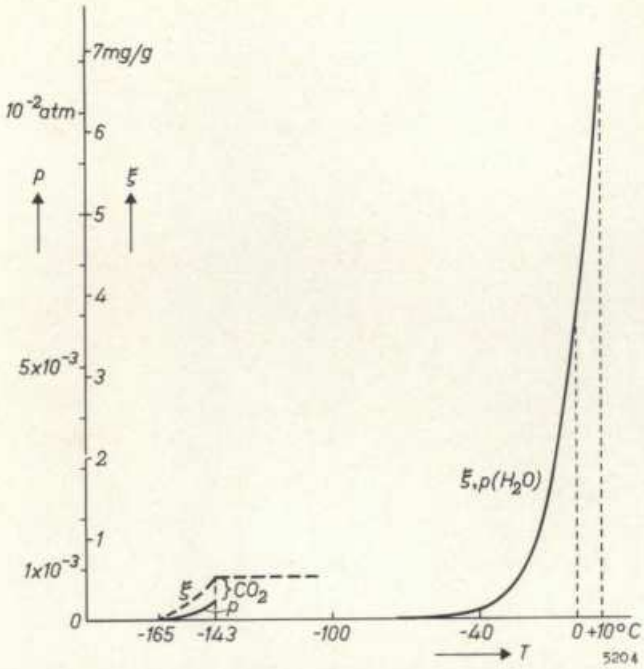

Fig. 2. Gehalte ξ aan waterdamp en koolzuur, en dampspanning p van waterdamp en koolzuur, in verzadigde lucht als functie van de temperatuur T. (ξ is uitgedrukt in milligram waterdamp resp. koolzuur per gram droge lucht.)

Uit het streven om aan dit bezwaar tegemoet te komen, is een andere constructie voortgekomen. Deze wordt hieronder beschreven. In tegenstelling met de bovengenoemde ijsafscheider wordt in de nieuwe afscheider de waterdamp uit de lucht alleen in de vorm van sneeuw afgezet, reden waarom wij hem de naam sneeuwafscheider hebben gegeven.

De sneeuwafscheider

Bij de constructie van de nieuwe afscheider is gebruik gemaakt van een verrassend feit, dat toevallig is ontdekt bij een onderzoek dat op een ander doel was gericht. Hierbij bleek namelijk dat wanneer men een luchtstroom leidt door een gaas dat op een zeer lage temperatuur wordt gehouden, zich op dit gaas een laag sneeuw vormt die zeer lang poreus blijft. Op het eerste gezicht zou men verwachten dat de sneeuwlaag in korte tijd zou dichtgroeien, doch de kristallen blijken zich op zodanige wijze te vormen dat dit niet het geval is.

Door van dit verschijnsel gebruik te maken in de nieuwe afscheider, waarvan de opslagruimte even groot is als bij de oude ijsafscheider (14 liter), hebben wij bereikt dat hierin ca. 5 kg sneeuw kan worden opgeslagen zonder dat deze verstopt raakt. Dit betekent dus dat de machine, voorzien van deze sneeuwafscheider, vijf maal zoveel vloeibare lucht continu kan produceren. Moest de oude afscheider ieder etmaal worden ontdooid, *bij de nieuwe afscheider kan men volstaan met één of twee maal ontdooien per week.*

Het voornaamste bestanddeel van de sneeuwafscheider is een cilinder van fijn kopergaas (*fig. 3*), die op later te bespreken wijze op lage temperatuur

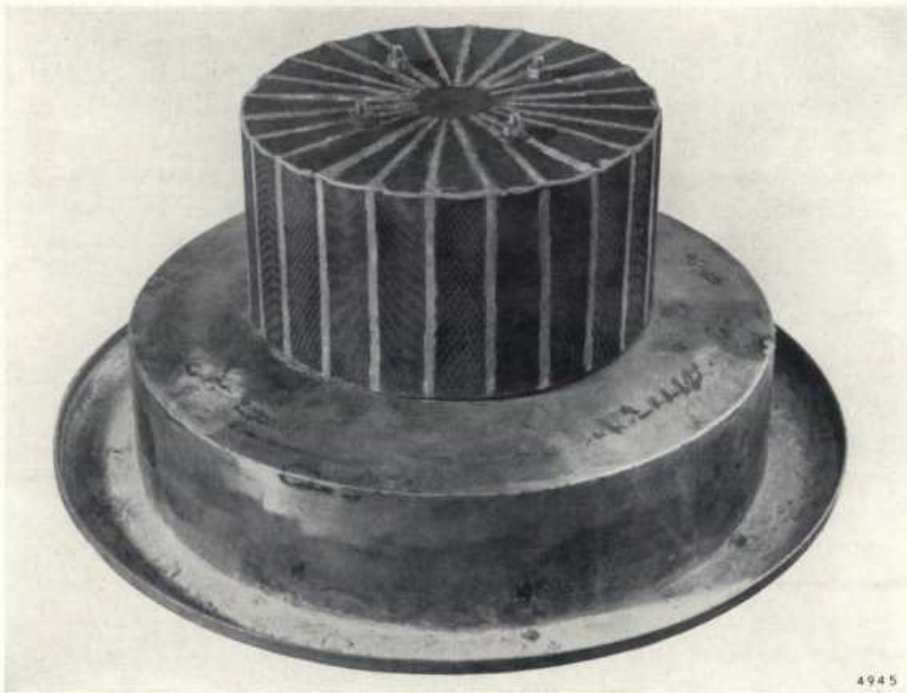

Fig. 3. Cilinder van fijn kopergaas, waarop waterdamp en koolzuur uit de erdoorheen stromende lucht zich als poreuze sneeuw afzetten.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Fig. 4. Een ca. 10 cm dikke poreuze sneeuwtaart, die zich in één week tijds op het sneeuwgaas heeft afgezet.

wordt gehouden. Dit „sneeuwgaas" is omgeven door een dubbele mantel; tussen de mantel en het gaas bevindt zich de ruimte waarin de sneeuw wordt gevormd. De aangezogen lucht, die vloeibaar gemaakt moet worden, stroomt via de dubbele mantel, waarin hij wordt voorgekoeld, naar de sneeuwruimte, passeert het gaas en wordt vervolgens gecondenseerd op de kop van de koelmachine. Bij het stromen van deze lucht door het gaas vormt zich hierop een laag sneeuw. De laag groeit geleidelijk aan tot een sneeuwkap, waar de lucht dus ook doorheen moet. *Fig. 4* laat zo'n „sneeuwtaart" zien, waarvan een deel is weggesneden. De afgebeelde kap is in zes etmalen tijd aangegroeid tot een dikte van ca. 10 cm; hiervan bestaat de binnenste laag, ca. 0,5 cm dik, uit koolzuursneeuw. De dichtheid van de sneeuw is vrij groot: gemeten is 0,4 g/cm^3 voor de water- en 0,9 g/cm^3 voor de koolzuursneeuw. Niettemin blijkt de laag nog steeds poreus te zijn: het drukverval erover, bij volle capaciteit van de koelmachine, is niet meer dan 20 cm water.

Aan welke voorwaarden nu moet worden voldaan om de sneeuwlaag poreus te doen blijven? Om deze vraag te beantwoorden, dienen we ons een duidelijker beeld te vormen van de wijze waarop de sneeuwlaag zich vormt.

De wijze waarop de sneeuwlaag zich vormt

Zolang zich op het gaas nog geen sneeuwlaag heeft afgezet, komt betrekkelijk warme lucht in aanraking met het gaas. Om te voorkomen dat de in deze lucht aanwezige, nog relatief grote, hoeveelheid waterdamp het gaas passeert, moet het gaas in staat zijn, de lucht tot een zeer lage temperatuur af te koelen. Daartoe moet ten eerste het gaas zelf op een zeer lage temperatuur worden gehouden (— 165 °C; ter vergelijking zij vermeld dat de temperatuur van vloeibare lucht — 194 °C is), en ten tweede moet het, om het warmtecontact met de lucht te bevorderen, fijne mazen hebben.

Na het aanzetten van de machine zal een deel van de verontreinigingen zich aanvankelijk op het gaas afzetten door diffusie, dus door de beweging van waterdamp en koolzuur als gevolg van plaatselijke verschillen in partiële dampdruk. Aan het oppervlak van het koude gaas zijn de partiële dampdrukken veel lager dan in de warmere aanstromende lucht (fig. 2). Dit maakt dat de laag sneeuw aangroeit tegen de aanstromende lucht in. Het is niet te vermijden dat in het begin een deel van de verontreinigingen reeds in de luchtstroom sneeuwkristallen vormt en dat deze het gaas passeren. Het andere deel echter, dat zich op het gaas heeft

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

vastgezet, vergroot het warmteopnemende oppervlak, en al spoedig nadat er zich een dun sneeuwlaagje heeft afgezet, met vele nauwe kanalen erin, zal de overgang van warmte zowel als de afzetting van verontreinigingen nagenoeg volkomen zijn.

De sneeuw zet zich eerst af in de vorm van relatief lange kristalnaalden. Vervolgens wordt de ruimte tussen de naalden langzamerhand opgevuld met kleinere sneeuwkristallen. Zolang de temperatuur van de sneeuwlaag ver genoeg beneden het smeltpunt blijft, vormt er zich geen ijsachtige laag. Door het opvullen met kleinere kristallen neemt de porositeit van de eerstgenoemde laag wel af, maar inmiddels heeft zich verder naar buiten een nieuwe, zeer poreuze, laag met lange naalden afgezet, die het grootste deel van de volgende kleine kristallen opvangt en daardoor de eerste laag lange tijd voor verstopping vrijwaart, en zo vervolgens. Men moet dus de omstandigheden zo kiezen dat de sneeuw zich hoofdzakelijk op de buitenkant van de laag afzet, zodat de hoeveelheid verontreinigingen die zich nog *in* de laag kan afzetten, klein blijft.

Daar de per seconde getransporteerde massa van een verontreiniging evenredig is met de partiële druk van die verontreiniging in de lucht, moet men ervoor zorgen dat de temperaturen in de sneeuwlaag zich zodanig instellen dat de partiële druk in de sneeuwlaag (die uiteraard gelijk is aan de dampdruk, behorende bij de temperatuur ter plaatse) *veel* lager is dan de partiële druk in de toegevoerde lucht. Uit fig. 2 blijkt dat de dampdruk bij dalende temperatuur sterk afneemt.

Om aan deze voorwaarde te voldoen, moet dus overal in de sneeuwlaag de temperatuur beneden een bepaalde waarde blijven. Uit proeven is gebleken dat de temperatuur van de buitenkant van de watersneeuwlaag, bij een dauwpunt van 10 °C van de aangevoerde lucht, beneden — 40 °C moet blijven. Aangezien de laag aan de buitenkant door de aanstromende lucht wordt verwarmd, moet de laag op deze lage temperatuur worden gehouden door geleiding via de sneeuwkristallen naar het gekoelde gaas.

Bij een temperatuur van — 40 °C aan het oppervlak van de sneeuwlaag zal 99% van de toegevoerde waterdamp zich op de buitenkant afzetten, terwijl slechts 1% nog in dampvorm verder gaat en, bij lagere temperaturen, meer naar binnen in de laag wordt afgezet (zie fig. 2). Daar waar de temperatuur in de laag is gedaald tot — 143 °C, gaat ook het koolzuur uitsneeuwen. Ten einde het koolzuur in voldoende mate te vangen, moet men ervoor zorgen dat de laagste temperatuur (van het gaas dus) niet boven — 165 °C komt. Bij — 165 °C wordt nog 1% van de toegevoerde hoeveelheid koolzuur als damp doorgelaten, maar dit blijkt toelaatbaar te zijn.

Het moment waarop de stromingsweerstand zo groot was geworden dat men de machine moest stoppen om de laag te laten ontdooien, werd bij de eerste constructies van de sneeuwafscheider bepaald door de hoeveelheid koolzuur die zich in de watersneeuwlaag afzette. Hierin is nog een belangrijke verbetering gebracht door om het cilindrische sneeuwgaas heen een ca. 12 mm dikke laag zig-zag gevouwen metaalgaas („harmonicagaas") aan te brengen (*fig. 5*). Dit maakt dat het koolzuur

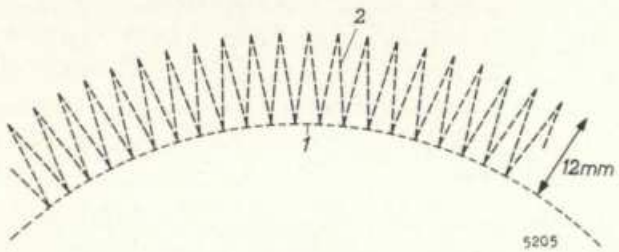

Fig. 5. Om het sneeuwgaas *1* is een ca. 12 mm dikke laag „harmonicagaas" *2* aangebracht. Dit bevordert de afzetting van watersneeuw aan de buitenzijde van de sneeuwlaag en biedt meer ruimte voor de afzetting van koolzuursneeuw.

zich vrijwel niet meer in de watersneeuw afzet, maar hoofdzakelijk in het harmonicagaas. De watersneeuw vormt zich op de buitenkant van het harmonicagaas, terwijl de koolzuursneeuw binnen dit gaas een grote ruimte ter beschikking heeft. Op deze wijze is het moment waarop de stromingsweerstand te groot wordt, naar een veel later tijdstip verschoven.

In de voorgaande beschouwingen is steeds gesproken over „de" temperatuur van het sneeuwgaas, alsof overal in het gaas de temperatuur dezelfde was. Dit laatste is niet het geval. Het gaas krijgt over zijn gehele oppervlak warmte toegevoerd, die door geleiding, via de draden van het gaas, moet afvloeien naar de plaatsen waar het gaas aan gekoelde strippen of pijpen is gesoldeerd (deze constructieve details komen in de figuren aan het slot van dit artikel nog aan de orde). Het gaas is dientengevolge midden tussen de soldeerplaatsen minder koud. De temperatuurverschillen in het gaas moeten dus klein blijven als men het gaas overal beneden — 165 °C wil houden, d.w.z. het gaas moet de warmte goed geleiden. Daarom komt, zoals een eenvoudige berekening en proeven uitwijzen, als materiaal voor het gaas alleen koperdraad in aanmerking, dat bovendien niet te dun mag zijn.

Een ander verschijnsel waarvan we bij proeven moeilijkheden hebben ondervonden, is het volgende.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Treedt de toegevoerde lucht de sneeuwruimte binnen door een kleine opening, dus met een grote snelheid, zodat wervelingen ontstaan, dan slaat de sneeuwlaag zeer snel dicht. Onze verklaring hiervoor is als volgt. De wervelende lucht wordt door het sneeuwoppervlak sterk afgekoeld, waardoor kleine harde sneeuwkristallen ontstaan, die geen neiging vertonen, zich vast te zetten tot de gewenste luchtige sneeuw. Men noemt sneeuw van deze structuur „poolsneeuw". Deze poolsneeuw vult klaarblijkelijk de fijne kanaaltjes volledig op, waardoor de stromingsweerstand sterk toeneemt. Laat men de lucht de sneeuwruimte binnenkomen door een grote opening, dus met kleine snelheid, dan worden geen moeilijkheden ondervonden. Weliswaar zou men verwachten dat de grote temperatuurverschillen toch wel enige convectiestromen in de lucht veroorzaken, maar blijkbaar gebeurt dit niet in een mate die hinderlijk is.

Berekening van het temperatuurverloop

Het temperatuurverloop in de sneeuwlaag, speciaal in verband met de grootte van de luchtstroom die men wil verwerken, zullen we toelichten aan de hand van een berekening. Daartoe moeten de onderstaande vereenvoudigde onderstellingen worden gemaakt.

1) De temperatuur van de lucht en die van de sneeuw worden op iedere plaats gelijk genomen; er wordt dus een oneindig goed warmtecontact ondersteld.
2) Aangenomen wordt dat de gehele sublimatiewarmte van de verontreinigingen en de warmte die nodig is voor het afkoelen van de aanstromende lucht tot de temperatuur van de buitenkant van de sneeuwlaag, vrijkomen op het buitenoppervlak van de sneeuw (in werkelijkheid zal deze warmte worden afgegeven in een laagje van enkele mm dikte).
3) Uit (2) volgt dat de sublimatiewarmte van de geringe hoeveelheid verontreinigingen die zich in de sneeuwlaag afzet, wordt verwaarloosd. In de laag verandert de enthalpie h van de lucht dan lineair met de temperatuur T; zie *fig. 6*, waarin de helling van de lijn gelijk is aan de soortelijke warmte c_p van lucht bij constante druk:

$$\frac{dh}{dT} = c_p . \quad \ldots\ldots \quad (1)$$

4) De warmtegeleidingscoëfficiënt λ van de sneeuw wordt op alle plaatsen even groot en constant ondersteld (in werkelijkheid is λ afhankelijk van zowel de temperatuur en de dichtheid als van de structuur van de sneeuw).
5) Hoewel het sneeuwgaas en de buitenkant van de sneeuwkap coaxiale cilindermantels zijn, zullen we ze beschouwen als evenwijdige platte vlakken.

Voor het afleiden van het radiale temperatuurverloop denken we ons een cilindrische doorsnede door de sneeuwlaag op een afstand x van het sneeuwgaas; deze doorsnede denken we ons opengeknipt en, in overeenstemming met (5), tot een plat vlak gebogen. Als oppervlakte A van de doorsnede nemen we het gemiddelde van de oppervlakte van het

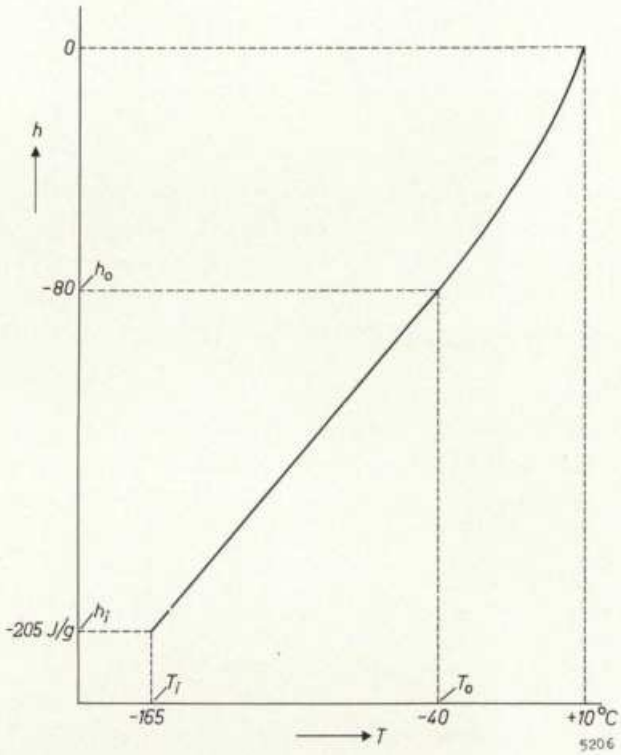

Fig. 6. Enthalpie h van lucht als functie van de temperatuur T. De enthalpie van de omgevingslucht is gelijk aan nul gesteld.

sneeuwgaas en die van de buitenkant van de sneeuwkap. Het verloop van de enthalpie h van de lucht met de temperatuur T in de doorsnede is gegeven in *fig. 7*. We zijn vrij om af te spreken, welke luchttoestand we de enthalpie nul toekennen; de formules worden het eenvoudigst als we de enthalpie van de toegevoerde lucht (omgevingslucht) nul stellen.

Bij een stationair temperatuurverloop is de totale warmtestroom door iedere doorsnede van de laag constant, en wegens de zoëven gemaakte afspraak gelijk aan nul. De totale warmtestroom bestaat uit een enthalpiestroom in de lucht en een door de sneeuw afgevoerde warmtestroom. De enthalpiestroom is gelijk aan mh, als m de per seconde verplaatste luchtmassa is, en door de sneeuw wordt

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

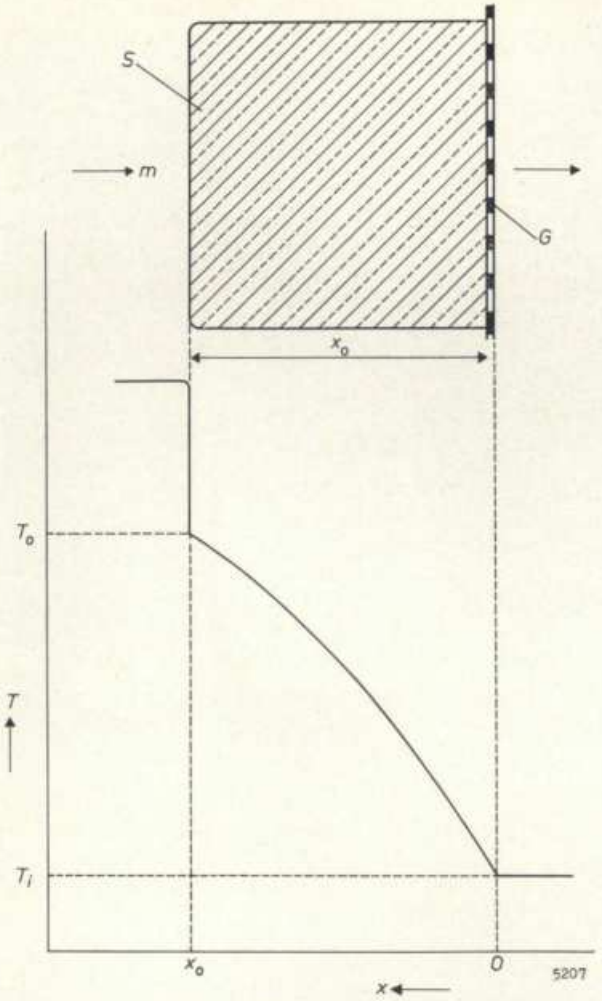

Fig. 7. Boven: axiale doorsnede door de sneeuwkap S, met dikte x_0. Het sneeuwgaas is aangeduid met G, de luchtstroom met m.
Beneden: verloop van de temperatuur T met de afstand x tot het sneeuwgaas.

afgeleid een warmtestroom gelijk aan $\lambda A\ \mathrm{d}T/\mathrm{d}x$. Er geldt dus:

$$mh + \lambda A \frac{\mathrm{d}T}{\mathrm{d}x} = 0.$$

Maken we gebruik van verg. (1), dan vinden we na integratie over de dikte x_0 van de laag:

$$\frac{m\, c_p\, x_0}{\lambda A} = \ln \frac{h_i}{h_0}, \quad \ldots \quad (2)$$

waarin de indices i en o betrekking hebben op de binnen- resp. buitenzijde van de laag.

Kiezen we op grond van eerder genoemde overwegingen voor de temperatuur T_i van het gaas -165 °C en als hoogste toelaatbare temperatuur T_0 van het oppervlak -40 °C, dan zijn volgens fig. 6 de bijbehorende enthalpiewaarden: $h_i = 205$ joule/gram en $h_0 = 80$ joule/gram. Bij de gekozen constructie was de maximale dikte x_0 van de sneeuw 7 cm en de doorsnede A gemiddeld 0,2 m². Met $c_p = 1$ joule/gram en $\lambda = 0{,}6$ W/m °C vinden we uit (2) als maximaal toelaatbare luchtstroom: $m = 1{,}6$ gram per seconde. Dit komt redelijk goed overeen met de in de praktijk gevonden waarde van 1,8 gram per seconde.

Met een vochtgehalte van 0,75 gew.-% (dauwpunt 10 °C) en een dichtheid van de sneeuw van 0,4 g/cm³ volgt dan dat de „draaitijd" (gedurende welke de machine onafgebroken kan werken) $4\frac{1}{2}$ dag bedraagt. Neemt men de luchtstroom twee maal zo groot, zodat er per seconde twee maal zoveel verontreiniging wordt aangevoerd, dan wordt volgens (2) de dikte x_0 waarbij de temperatuur zo hoog is opgelopen (tot -40 °C) dat de afscheider niet goed meer werkt, half zo groot, en met x_0 wordt het sneeuwopslagvolume half zo groot. De draaitijd τ wordt derhalve vier maal zo kort. Dit kwadratische effect ($\tau \sim m^{-2}$) vindt men inderdaad in de praktijk (*fig. 8*).

Verder blijkt uit (2) dat het gunstig moet zijn, de warmtegeleiding λ te vergroten, b.v. door in de sneeuw koperen pennen of strippen aan te brengen. Het bovengenoemde harmonicagaas werkt ook in deze richting.

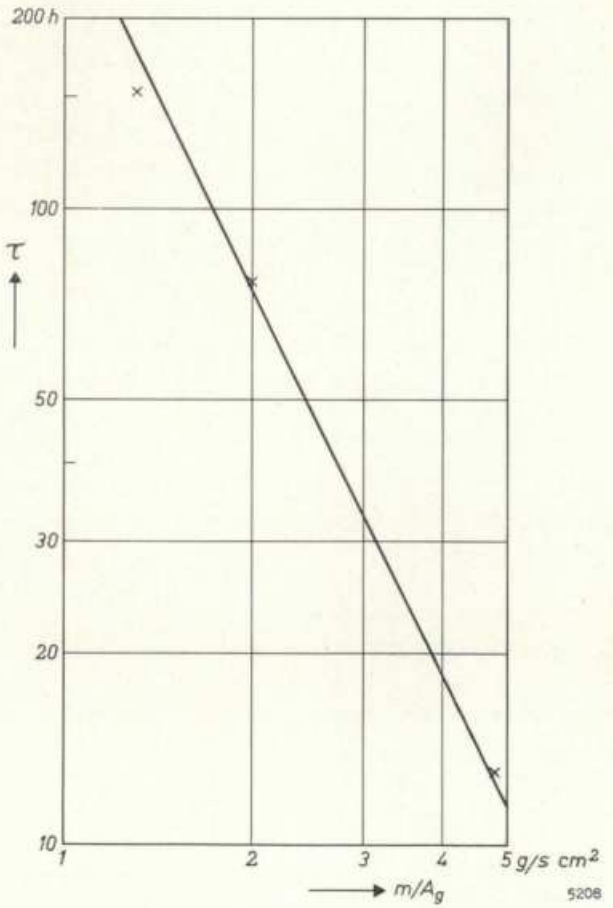

Fig. 8. De „draaitijd" τ als functie van de luchtstroom m per eenheid van oppervlakte A_g van het gaas. De rechte lijn geeft de betrekking $\tau \sim m^{-2}$ weer, de kruisjes corresponderen met gemeten waarden.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

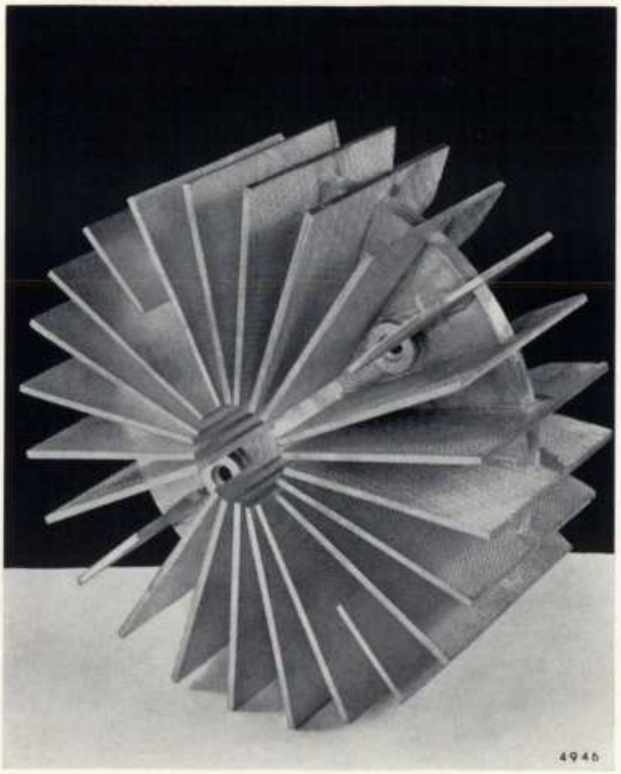

Fig. 9

Fig. 10

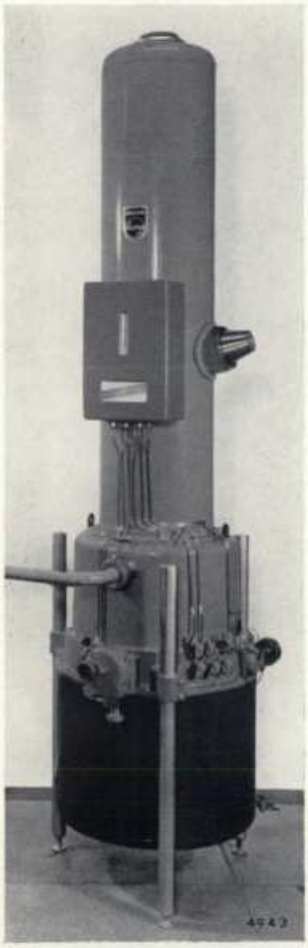

Fig. 11

Fig. 9. Bij de koudgaskoelmachine wordt het sneeuwgaas gesoldeerd op het afgebeelde koperen rooster, dat met enige bouten op de koude kop van de machine is bevestigd en dat de warmte rechtstreeks daarheen afvoert.

Fig. 10. Bij luchtsplitsingsinstallaties voor het bereiden van vloeibare stikstof wordt het sneeuwgaas (hier gedeeltelijk weggenomen) gesoldeerd op een krans van koperen pijpen, waar vloeibare zuurstof van ca. — 180 °C doorheen stroomt.

Fig. 11. Luchtsplitsingskolom (zonder de koelmachine) voor het leveren van vloeibare stikstof [2]). Het onderste, donkere, gedeelte is een isolatiemantel, waarbinnen zich de in fig. 10 afgebeelde constructie bevindt.

De wijze van toepassing van de sneeuwafscheider in een vloeibareluchtmachine en in een luchtsplitsingskolom [2]) wordt tot slot geïllustreerd door *fig. 9, 10* en *11*. In de onderschriften zijn enige constructiedetails vermeld.

[2]) J. van der Ster en J. W. L. Köhler, Een kleine luchtsplitsingsinstallatie met koudgaskoelmachine voor het maken van vloeibare stikstof, Philips techn. T. **20**, 196-206, 1958.
J. van der Ster, The production of liquid nitrogen from atmospheric air using a gas refrigerating machine, dissertatie Delft 1960.
Zie ook Nederlandse octrooiaanvrage no. 219 381, openbaar gemaakt 15 augustus 1960.

Samenvatting. Lucht die men vloeibaar wil maken, moet ontdaan worden van waterdamp en koolzuur. Bij de Philips koudgaskoelmachine gebeurde dit tot voor kort door middel van een ijsafscheider, waarop de genoemde verontreinigingen zich als ijs en sneeuw afzetten. Een bezwaar van deze afscheider is dat hij dagelijks ontdooid moet worden. Een geheel nieuwe constructie van afscheider bestaat uit een cilindermantel van kopergaas, die op een temperatuur van —165 °C wordt gehouden en waar de vloeibaar te maken lucht doorheen wordt gezogen. Waterdamp en koolzuur zetten zich op het gaas af als een laag poreuze sneeuw (vandaar de naam sneeuwafscheider). De laag blijft dagenlang poreus en veroorzaakt weinig drukverval. Ontdooiing is nu pas nodig na een produktie van 600 liter vloeibare lucht (5 maal zoveel als voorheen), d.w.z. één of twee maal per week. Ook in luchtsplitsingsinstallaties wordt de sneeuwafscheider met succes gebruikt.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

OVERZICHT VAN RECENTE WETENSCHAPPELIJKE PUBLIKATIES DER N.V. PHILIPS' GLOEILAMPENFABRIEKEN

Van deze publikaties, voor zover niet met een sterretje * gemerkt, verstrekt de Administratie van Philips' Natuurkundig Laboratorium, Eindhoven, op aanvraag overdrukken.

2831: B. Bölger, B. J. Robinson en J. Ubbink: Some characteristics of a maser at 1420 MHz (Physica **26**, 1-18, 1960, no. 1).

Beschrijving van de constructie van een vastestofmaser (een microgolfversterker die werkt met gestimuleerde emissie) voor 1420 MHz, d.i. de frequentie van de interstellaire waterstofstraling. De werkzame ionen zijn Cr^{3+}-ionen op Co-plaatsen in $K_3Co(CN)_6$, die vier energieniveaus bezitten. De Cr^{3+}-concentratie bedraagt 0,05%. Door instraling met de pompfrequentie f_{13}, die 3850 MHz bedraagt, worden de bezettingen n_1 en n_3 van de niveaus *1* en *3* aan elkaar gelijk gemaakt. Wordt als gevolg hiervan de bezetting n_2 van het tussenliggende niveau *2* groter dan n_1, dan zal straling met frequentie f_{12} (de signaalfrequentie) gestimuleerde emissie tot gevolg hebben en versterkt worden. Aanpassing van de energieniveauverschillen bij de gewenste waarden (f_{12} moet 1420 MHz zijn) geschiedt met een regelbaar uitwendig magneetveld. Het artikel bevat tevens een beschrijving van resonantieproeven ter bepaling van de mogelijke magneetveldinstellingen, van de verkregen versterking en bandbreedte, en van het gedrag van de maser bij verzadiging. Ook enkele resultaten die zijn verkregen met robijn (Cr^{3+} in Al_2O_3), worden vermeld. De geconstrueerde maser is voor radio-astronomische toepassingen niet erg geschikt omdat bandbreedte en stabiliteit te gering zijn. Betere resultaten zijn te verwachten als men het kristal in een zg. langzame golfstructuur zou plaatsen.

2832: N. W. H. Addink: The determination of trace elements (J. Iron and Steel Inst. **194**, 199-211, 1960, no. 2).

Bespreking van de door de auteur ontwikkelde methode van spectrochemische analyse, die berust op totale verdamping in een gelijkstroomkoolboog, en die o.a. in Philips' Natuurkundig Laboratorium te Eindhoven wordt toegepast. De methode is o.m. geschikt voor het onderzoeken van zeer kleine hoeveelheden materiaal (tot 0,01 microgram). De auteur behandelt verschillende factoren die een rol spelen, in het bijzonder de snelheid van verdamping en het daarvan afhangende verlies aan materiaal. Aan deze factor besteedt men in het algemeen te weinig aandacht. Resultaten verkregen bij de analyse van oplossingen, zonder en met chemische voorconcentratie, worden vermeld. Vervolgens wordt de röntgenfluorescentieanalyse besproken en vergeleken met de spectrochemische aan de hand van analyses volgens beide methodes van een aantal ijzerstandaarden en van bepalingen van Zn en Fe in bloed. Bij de spectrochemische methode wordt een redelijke nauwkeurigheid bereikt terwijl uiterst weinig materiaal nodig is; bij de röntgenfluorescentiemethode is de nauwkeurigheid groot, maar er is wat meer materiaal nodig.

2833: M. Avinor: Visible emission of nickel-activated CaS (J. chem. Phys. **32**, 621-622, 1960, no. 2).

Aangetoond wordt dat de door Lenard e.a. gesignaleerde emissie in het rood bij met Ni geactiveerd CaS niet het gevolg is van de aanwezigheid van Ni alleen. De rode emissie werd vermoedelijk veroorzaakt door sporen Cu naast Ni. Alleen Ni geeft een zwakke groene fluorescentie en alleen Cu een blauwgroene.

2834: H. Koopman en J. Daams: Investigations on herbicides, III. 2,4-disubstituted 6-chloro-1,3,5-triazines (Rec. Trav. chim. Pays-Bas **79**, 83-89, 1960, no. 1).

De bekende herbicide werking van verbindingen als 2-alkyloxy- en 2-alkylthio-4,6-dichloor-1,3,5-triazine was aanleiding om te proberen in dit soort verbindingen een tweede chooratoom te vervangen door een alkylamino-, alkyloxy- of alkylthiogroep. Er worden 13 dergelijke verbindingen beschreven en de bereiding wordt kort aangegeven. Een tabel vermeldt de reactieopbrengsten (14-100%), de kookpunten en de herbicide werking.

2835: J. G. van Wijngaarden: Un tube à propagation d'ondes pour la bande de 3800 à 5000 MHz (Le Vide **15**, 36-40, 1960, no. 85; Franse en Engelse tekst).

Constructie van een lopendegolfbuis voor het genoemde frequentiegebied. De theorie wordt bekend ondersteld. Vrij uitvoerig wordt ingegaan op de glastechnische bijzonderheden, zoals insmelting, justering en ontgassing, en op de constructie van de permanente magneet. Het doel van de constructeur, nl. een buis die kan worden vervangen zonder dat enig bijstellen nodig is, met een levensduur van meer dan 10 000 uur, constante karakteristieken en een goed afgeschermd magneetveld, is bereikt, mede dank zij het gebruik van een naleveringskatode (L-katode).

2836: B. B. van Iperen: Reflex klystrons for millimeter waves (Proc. Symp. on millimeter waves, New York, 31 mrt.-2 apr. 1959, blz. 249-259, Polytech. Inst. Brooklyn, 1960).

Zie Philips techn. T. **21**, 225-232, 1959.

2837: H. J. Prins: Transforms for finding probabilities and variate values of a distribution function in tables of a related distribution function (Statistica neerl. **14**, 1-17, 1960, no. 1).

In de statistiek zijn een aantal verdelingsfuncties in gebruik, die vaak door middel van geschikte substituties in elkaar kunnen worden getransformeerd. Voor de meest bekende verdelingen worden in dit artikel de transformaties gegeven. Met behulp hiervan kunnen statistici bestaande tabellen uit andere tabellen completeren. Ook kan de kennis van de verbanden tussen de verdelingen leiden tot meer inzicht in bepaalde toetsingsmethodes. Dit laatste punt wordt echter niet uitvoerig uitgewerkt.

2838: J. S. C. Wessels: Adenosine triphosphatase activity in chloroplasts (Acta chem. Scand. **14**, 233-246, 1960, no. 2).

Aan een suspensie van chloroplasten van spinazie werd adenosine-trifosfaat (ATP) toegevoegd en bij een deel der proeven bovendien $MgCl_2$. Bij een temperatuur van 30 °C werd dan uit het ATP anorganisch fosfaat afgesplitst. De in een gegeven tijd ontstane hoeveelheid fosfaat werd colorimetrisch bepaald. De proeven zijn gedaan met verschillende chloroplastenpreparaten. Bovendien werd bij ieder preparaat de invloed van p_H onderzocht. De reactie wordt toegeschreven aan een in de chloroplasten aanwezig enzyme, dat hier met ATP-ase is aangeduid. Bij $p_H = 7{,}5$ was de activiteit der onderzochte preparaten vrijwel gelijk. Zij werd sterk vergroot door $MgCl_2$ en geremd door chloorpromazine. De reactie bij aanwezigheid van $MgCl_2$ is ook kinetisch onderzocht. Op grond van proeven waarbij ATP was vervangen door Na-pyrofosfaat, moet uitgesloten worden geacht dat de reactie met ATP neerkomt op het vrijmaken van anorganisch pyrofosfaat. Bij $p_H = 5{,}5$ was de activiteit voor verschillende preparaten zeer verschillend, en ongevoelig voor $MgCl_2$ en chloorpromazine.

Besproken wordt nog of er een functioneel verband bestaat tussen de onderzochte reacties en het enzymatische mechanisme, waardoor fosforylering van adenosinedifosfaat (ADP) is gekoppeld met elektronentransport tijdens de belichting van chloroplasten.

2839: J. Hornstra: Models of grain boundaries in the diamond lattice, II. Tilt about ⟨001⟩ and theory (Physica **26**, 198-208, 1960, no. 3).

Vervolg van publikatie no. **2727.** Beschrijving van modellen van kristalgrenzen in het diamantrooster, die ontstaan als de twee delen van het kristal over een grote hoek ten opzichte van elkaar zijn gedraaid om de ⟨001⟩-as. Voor alle waarden van de draaiingshoek kan daarbij gebruik worden gemaakt van dislocaties zonder vrije bindingen (zie deze publikaties no **2591**). Een der modellen kan naar believen worden beschouwd als een rij van randdislocaties of als een rij van 45°-dislocaties. Ten

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

slotte wordt de kristallografie van regelmatige kristalgrenzen besproken. Het begrip „kristalgrensindex" wordt ingevoerd en een voorbeeld gegeven van de toepassing van de transformatiematrix op kristalgrensproblemen.

2840: M. Koedam: Sputtering of single crystal metals bombarded with rare gas ions of low energy (50-350 eV) (Proc. 4th int. conf. on ionization phenomena in gases, Uppsala, 17-21 aug. 1959, onder redactie van N. R. Nilsson, blz. ID 252-ID 254, North-Holland Publ. Co., Amsterdam 1960).

Monokristallen van Cu en Ni werden op het (111)- en het (110)-vlak gebombardeerd met edelgasionen. De richtingsverdeling der verstoven atomen werd bepaald, alsmede de opbrengst als functie van de ionenergie (50-350 eV) voor Kr^+, Ar^+ en Ne^+. (Zie ook deze publikaties nr. **2767**.)

2841: G. J. M. Ahsmann en Z. van Gelder: The normal cathode fall on single crystal cathodes (als **2840**, blz. ID 266-ID 268).

Monokristallen van Ge, Si en Cu zijn als katode gebruikt in glimontladingen in neon. De minimumbrandspanning werd geacht de normale katodeval voor te stellen. Deze hangt af van de oriëntatie van het kristal. Sommige kristalvlakken, b.v. (100) bij Ge, worden ruw. Er is blijkbaar een neiging om door katodeverstuiving andere vlakken, waarschijnlijk (111)-vlakken, tot kristalbegrenzing te maken. De gemeten waarden zijn stabiel en reproduceerbaar.

2842: M. Klerk: A contribution to the investigation of the striated positive column (als **2840**, blz. IIA 283-IIA 285).

Een onderzoek van de gestrieerde zuil in neon en argon bij gelijkstroomontlading en bij hoogfrequentie-ontladingen (10-30 MHz) leidt tot de conclusie dat het ontstaan van striaties in hoofdzaak toe te schrijven is aan eigenschappen van het plasma, maar dat in sommige gevallen de condities aan de wanden en de elektrodes hiervoor mede bepalend zijn.

2843: G. J. M. Ahsmann: The impedance and recovery time of glow discharges in mixtures of rare gases (als **2840**, blz. IIA 309-IIA 313).

Metingen worden meegedeeld betreffende de (complexe) impedantie van een glimontlading, zonder positieve zuil, in mengsels van edelgassen bij drukken van de orde van 10 mm Hg. Deze impedantie is het quotiënt van een op de brandspanning gesuperponeerde kleine wisselspanning en de resulterende wisselstroomcomponent van de stroom. De impedantie is zeer gevoelig voor toevoeging van een edelgas met een ionisatiespanning die lager is dan die van het hoofdbestanddeel. Zij is verder omgekeerd evenredig met de beweeglijkheid van de ionen in de donkere ruimte van Crookes. Ook is onderzocht welke invloed bijmengsels hebben op de hersteltijd (tijd waarna, na doven van de ontlading, de doorslagspanning teruggekeerd is tot een waarde die een bepaald bedrag beneden de statische ontsteekspanning ligt).

2844: Th. P. J. Botden: A decade indicator glow-discharge tube operating on signals of low current and voltage (als **2840**, blz. IID 443-IID 447).

Zie Philips techn. T. **21**, 233-241, 1959.

2845: O. Reifenschweiler: Massenspektrometrische Untersuchungen der Ionenemission und Ionenverteilung von Gasentladungsplasmen (als **2840**, blz. IIE 541-IIE 548).

Bespreking van een methode om de ionenemissie door gasontladingsplasma's te onderzoeken, die het mogelijk maakt conclusies te trekken omtrent de dichtheidsverdeling van de ionen in het plasma. Het onderzoek, dat oorspronkelijk betrekking had op de ontwikkeling van ionenbronnen, is ook van algemene betekenis voor de natuurkunde van de gasontladingen. Een ionenextractiesysteem, dat als een elektrostatische lens werkt, vormt een ionenoptische afbeelding van de plasmagrens, die als een ionen-emitterend vlak wordt opgevat. Dit beeld wordt door een tweede lenzensysteem afgebeeld op de ingangsopening van een magnetische massaspectrometer. Door deze opening tegelijk met de rest van de spectrometer zijdelings te verschuiven, tast men het beeld van de plasmagrens langs de diameter af en meet men de ionenstroomdichtheden van de H_1^+-, H_2^+- en H_3^+-ionen afzonderlijk. Het relatieve aandeel dat de verschillende soorten ionen tot de totale ionenstroom bijdragen, blijkt sterk af te hangen van de plaats op de plasmagrens. Als men een zwak magneetveld aanbrengt, verschuiven de emissiemaxima op de plasmagrens over afstanden die verschillen voor verschillende soorten ionen. Er wordt ook een verplaatsbare extractiesonde beschreven waarmee men metingen binnen het plasma kan uitvoeren.

2846: C. Z. van Doorn: Thermal equilibrium between F and M centers in potassium chloride (Phys. Rev. Letters **4**, 236-237, 1960, no. 5).

Monokristallen van KCl ($4 \times 5 \times 1{,}3$ mm) werden bij 697 °C in K-damp van verschillende druk verhit. Na het bereiken van het evenwicht (10 min) werden ze snel afgekoeld in CCl_4, waardoor het evenwicht werd ingevroren. De absorptie der F- en M-banden werd gemeten bij 77 °K. Het bleek dat de M-concentratie evenredig is met het kwadraat van de F-concentratie, in overeenstemming met het evenwicht $2F \rightleftarrows M$ (Van Doorn en Haven) en in tegenspraak met het onderstelde evenwicht $F +$ vacaturepaar $\rightleftarrows M$ (Seitz en Knox). Een ruwe meting van het verband tussen de evenwichtsconstante $K' = [M]/[F]^2$ en de temperatuur wijst op een vormingsenergie der M-centra van ca. 0,01 eV.

2847: R. van Strik: Uitschieters (Sigma **6**, 10-17, 1960, no. 1).

In dit artikel wordt aan de hand van de redeneerwijzen van de wiskundige statistiek het probleem der „uitschieters" behandeld en wordt nagegaan in hoeverre het verantwoord is uit een waarnemingsreeks waarden weg te laten die ver van de overige afwijken. De conclusie is dat dit slechts geoorloofd is indien men een onregelmatigheid in de uitvoering van de waarneming kan aantonen, of indien men over voldoende informatie beschikt omtrent de vorm der frequentieverdeling en de grootte van de variabiliteit. Speciaal op de mogelijkheid van niet-normale, c.q. scheve, verdelingen wordt nadrukkelijk de aandacht gevestigd. In zo'n geval zal namelijk, in plaats van verwerping van een extreme waarde, veeleer een transformatie van de uitkomsten wenselijk zijn, door in plaats van de gemeten waarden x, de waarden van b.v. $\log x$ of van x^n te bekijken. Een en ander wordt met voorbeelden toegelicht.

2848: H. Koopman en J. Daams: 2,6-dichlorobenzonitrile: a new herbicide (Nature **186**, 89-90, 1960, no. 4718).

Als onderdeel van een uitgebreider programma is de herbicide werking onderzocht van 2,6-dichloorbenzonitril. Deze stof blijkt de kieming van een aantal zaden in een agaroplossing te verhinderen in concentraties van 5×10^{-5} mg/ml. Besproeiing met 0,5-4 kg/ha belette het kiemen van wilde haver. Rijst, grondnoten, maïs en zonnebloemzaden bleken resistent. De groei van reeds ontwikkelde jonge planten werd eveneens belemmerd. Ook in dampvorm is de stof actief. De giftige werking op warmbloedige dieren is gering. De 50%-dodelijke dosis (LD50) voor muizen is groter dan 6 g/kg lichaamsgewicht oraal en groter dan 3g/kg intraperitoneaal. Een uitvoerig verslag verschijnt elders.

2849: N. W. H. Addink: Subnormal level of carbonic anhydrase in blood of carcinoma patients? (Nature **186**, 253, 1960, no. 4720).

Onlangs is door de schrijver aangetoond (deze publikaties no. **2726**) dat het bloed van kankerpatiënten abnormaal weinig Zn bevat (tekort van ca. 20 %). Daar Zn-atomen een bestanddeel vormen van diverse metalloproteïnen, is onderzocht of het Zn in bloed in de vorm van koolzuuranhydrase aanwezig is. De metingen aan diverse fracties van bloedpreparaten maken dit waarschijnlijk. De mogelijke invloed van een tekort aan koolzuuranhydrase op de stofwisseling wordt gereleveerd en de suggestie gedaan, de anti-carcinogene eigenschappen van deze stof te onderzoeken.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!